

拒絶引用S04 P1048W000

(19)日本国特許庁 (JP)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-3990

(43)公開日 平成10年(1998)1月6日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>  
H 05 B 33/14  
C 09 K 11/06

識別記号 庁内整理番号

F I  
H 05 B 33/14  
C 09 K 11/06

技術表示箇所  
Z

審査請求 未請求 請求項の数 7 FD (全 35 頁)

(21)出願番号 特願平8-174286

(22)出願日 平成8年(1996)6月13日

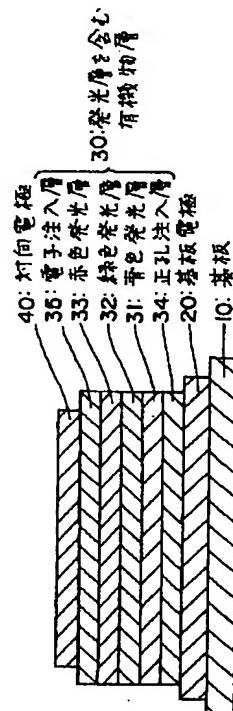
(71)出願人 000183646  
出光興産株式会社  
東京都千代田区丸の内3丁目1番1号  
(72)発明者 中村 浩昭  
千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株  
式会社内  
(72)発明者 松浦 正英  
千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株  
式会社内  
(74)代理人 弁理士 渡辺 喜平 (外1名)

(54)【発明の名称】 有機EL発光装置

## (57)【要約】

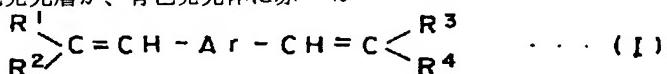
【課題】 高輝度、高効率の白色発光が可能な有機EL発光装置を提供する。

【解決手段】 基板10上に、基板電極20、発光層を有する有機物層30、および対向電極40を順次積層して形成された複数の発光画素が、それぞれ分離して配置された有機EL発光装置において、発光層が、青色発光層31、緑色発光層32、および赤色発光層33をこの順に有するものであり、また青色発光層31が、青色発光体に青色蛍光体を含有させた領域を有し、緑色発光層32が、青色発光体または緑色発光体に緑色蛍光体を含有させた領域を有し、かつ赤色発光層33が、青色発光体に赤色蛍光体を含有させた領域を有することを特徴とする有機EL発光装置。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板上に、基板電極、発光層を有する有機物層、および対向電極を順次積層して形成された複数の発光画素が、それぞれ分離して配置された有機EL発光装置において、  
発光層が、青色発光層、緑色発光層、および赤色発光層をこの順に有するものであり、また青色発光層が、青色発光体に青色蛍光体を含有させた領域を有し、緑色発光層が、青色発光体または緑色発光体に緑色蛍光体を含有させた領域を有し、かつ赤色発光層が、青色発光体に赤色蛍光体を含有させた領域を有する。



[式中、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>は、それぞれ水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～18のアリール基、置換もしくは無置換の芳香族複素環式基、置換もしくは無置換のシクロヘキシリル基、置換もしくは無置換の炭素数6～18のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のピリジル基を示す。ここで、置換基は炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアラルキル基、炭素数6～18のアリールオキシ基、炭素数1～6のアシル基、炭素数1～6のアシルオキシ基、カルボキシリル基、スチリル基、炭素数6～20のアリールカルボニル基、炭素数6～20のアリールオキシカルボニル基、炭素数1～6のアルコキシカルボニル基、ビニル基、アニリノカルボニル基、カルバモイル基、フェニル基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子を示す。これらの置換基は単一でも複数でもよい。また、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>は同一でも、また互いに異なっていてもよく、R<sup>1</sup>とR<sup>2</sup>及びR<sup>3</sup>とR<sup>4</sup>は互いに置換している基と結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。Arは置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリーレン基を表し、单一置換されていても、複数置換されていてもよく、また結合部位は、オルト、パラ、メタいずれでもよい。なお、置換基は前記と同じである。また、アリーレン基の置換基同士が結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。但し、Arが無置換フェニレンの場合、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>は、それぞれ炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアラルキル基、置換もしくは無置換のナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシリル基、アリールオキシ基より選ばれたものである。]

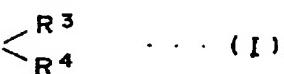
【請求項4】 前記基板電極または対向電極の少なくとも一方が、光透過性であり、その光透過性電極の、発光層を含む有機物層が形成されていない側の面に、カラーフィルタ層を配設してなることを特徴とする請求項1～

色蛍光体を含有させた領域を有することを特徴とする有機EL発光装置。

【請求項2】 前記それぞれの発光層における、蛍光体の発光体に対する含有割合が、0.1～10モル%であることを特徴とする請求項1記載の有機EL発光装置。

【請求項3】 前記青色発光体が、下記式(I)で示されるジスチリルアリーレン系化合物であることを特徴とする請求項1または2記載の有機EL発光装置。

## 【化1】



3のいずれか1項記載の有機EL発光装置。

【請求項5】 前記発光体と蛍光体とを含有する三つの領域のうちの各二つが形成する界面において、対向する二つの領域のそれぞれが、共通の有機化合物を含有する部分を含むことを特徴とする請求項1～4のいずれか1項記載の有機EL発光装置。

20 【請求項6】 前記発光体と蛍光体とを含有する三つの領域のそれぞれの厚さが、0.1～50nmであることを特徴とする請求項1～5のいずれか1項記載の有機EL発光装置。

【請求項7】 前記発光層が、青色発光層、緑色発光層および赤色発光層をこの順に有する積層を、さらに一回以上繰り返し積層したものであることを特徴とする請求項1～6のいずれか1項記載の有機EL発光装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

30 【発明の属する技術分野】 本発明は有機EL発光装置に関する。さらに詳しくは、高輝度、高効率の白色発光が可能な有機EL発光装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 エレクトロルミネッセンス素子(EL素子)は、自己発光のため視認性が高く、かつ完全固体素子であるため、耐衝撃性に優れるという特徴を有している。そのため、現在、無機または有機化合物を用いた様々なEL素子が提案され、かつ、実用化が試みられている。これらの素子のうち、有機EL素子は印加電圧を大幅に低下させることができるので、各種材料・素子の開発が進められている。さらに、現在用いられているパックライトやディスプレイなどの表示素子の軽量化にも有効である。白色発光する有機EL素子については、従来、次のような技術の開示がなされている。すなわち、

(1) 有機EL積層構造体の各層のエネルギー準位を規定し、トンネル注入を利用して発光させるもの(ヨーロッパ公開特許第0390551号公報)

(2) (1)と同じくトンネル注入を利用する素子で実施例として白色発光素子が記載されているもの(特開平3-230584号公報)

(3) 二層構造の発光層が記載されているもの（特開平2-220390号公報および特開平2-216790号公報）

(4) 発光層を複数に分割してそれぞれ発光波長の異なる材料で構成されたもの（特開平4-51491号公報）

(5) 青色発光体（蛍光ピーク380nm～480nm）と緑色発光体（480nm～580nm）とを積層させ、さらに赤色蛍光体を含有させた構成のもの（特開平6-207170号公報）

(6) 青色発光層が青色蛍光色素を含有し、緑色発光層が赤色蛍光色素を含有した領域を有し、さらに緑色蛍光体を含有する構成のもの（特開平7-142169号公報）

### 【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかし、上記技術にはそれぞれ次のような問題があった。すなわち、

(1) ヨーロッパ公開特許第0390551号公報では、キャリアをキャリア界面の蓄積によるトンネリング注入によって取り込むため白色発光するための域値電圧が存在し、その域値以下においては白色ではないため階調表示ができない。

(2) 特開平3-230584号公報では、二色の蛍光物の混合発光であるため良好な白色にはならない。

(3) 特開平2-216790号公報では、白色発光を呈するが、印加電圧30Vで輝度110cd/m<sup>2</sup>であり、駆動電圧が高いわりには発光効率が低い。

(4) 特開平4-51491号公報では、端面発光構造であり面全体としての用途には不適である。

(5) 特開平6-207170号公報では、発光層が二層構成であり、発光効率が小さい。さらに白色の色純度が悪い。

(6) 特開平7-142169号公報では、発光層が二層であり、これも発光効率が小さい。

【0004】本発明は、上述の問題に鑑みなされたものであり、高輝度、高効率の白色発光が可能な有機EL発光装置を提供することを目的とする。

### 【0005】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため、本発明によれば、基板上に、基板電極、発光層を有する有機物層、および対向電極を順次積層して形成された複数の発光画素が、それぞれ分離して配置された有機EL発光装置において、発光層が、青色発光層、緑色発光層、および赤色発光層をこの順に有するものであり、また青色発光層が、青色発光体に青色蛍光体を含有させた領域を有し、緑色発光層が、青色発光体または緑色発光体に緑色蛍光体を含有させた領域を有し、かつ赤色発光層が、青色発光体に赤色蛍光体を含有させた領域を有することを特徴とする有機EL発光装置が提供される。

【0006】また、その好ましい態様として、前記それ

ぞれの発光層における、蛍光体の発光体に対する含有割合が、0.1～10モル%であることを特徴とする有機EL発光装置が提供される。

【0007】また、その好ましい態様として、前記青色発光体が下記式(I)で示されるジスチリルアリーレン系化合物であることを特徴とする有機EL発光装置が提供される。

【0008】

【化1】

【0009】[式中、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>は、それぞれ水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～18のアリール基、置換もしくは無置換の芳香族複素環式基、置換もしくは無置換のシクロヘキシル基、置換もしくは無置換の炭素数6～18のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のピリジル基を示す。ここで、置換基は炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアラルキル基、炭素数6～18のアリールオキシ基、炭素数1～6のアシル基、炭素数1～6のアシルオキシ基、カルボキシル基、スチリル基、炭素数6～20のアリールカルボニル基、炭素数6～20のアリールオキシカルボニル基、炭素数1～6のアルコキシカルボニル基、ビニル基、アニリノカルボニル基、カルバモイル基、フェニル基、ニトロ基、水酸基あるいはハログン原子を示す。これらの置換基は単一でも複数でもよい。また、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>は同一でも、また互いに異なっていてもよく、R<sup>1</sup>とR<sup>2</sup>及びR<sup>3</sup>とR<sup>4</sup>は互いに置換している基と結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。Arは置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリーレン基を表し、单一置換されていても、複数置換されていてもよく、また結合部位は、オルト、パラ、メタいずれでもよい。なお、置換基は前記と同じである。また、アリーレン基の置換基同士が結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。但し、Arが無置換フェニレンの場合、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>は、それぞれ炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアラルキル基、置換もしくは無置換のナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基、アリールオキシ基より選ばれたものである。]

【0010】また、その好ましい態様として、前記基板電極または対向電極の少なくとも一方が、光透過性であり、その光透過性電極の、発光層を含む有機物層が形成されていない側の面に、カラーフィルタ層を配設してなることを特徴とする有機EL発光装置が提供される。また、その好ましい態様として、前記発光体と蛍光体とを含有する三つの領域のうち各二つが形成する界面において、対向する二つの領域のそれぞれが、共通の有機化

物を含有する部分を含むことを特徴とする有機EL発光装置が提供される。また、その好ましい態様として、前記発光体と蛍光体とを含有する三つの領域のそれぞれの厚さが、0.1nm～50nmであることを特徴とする有機EL発光装置が提供される。

【0011】さらにその好ましい態様として、前記発光層が、青色発光層、緑色発光層および赤色発光層をこの順に有する積層を、さらに一回以上繰り返し積層したものであることを特徴とする有機EL発光装置が提供される。

#### 【0012】

【発明の実施の形態】以下、本発明の有機EL発光装置の実施の形態を、図面を参照しつつ具体的に説明する。図1は、本発明の一の実施形態を模式的に示す断面図である。図1に示すように本発明の有機EL発光装置は、基板10上に、基板電極20、発光層を含む有機物層30、および対向電極40が順次積層して形成された複数の発光画素がそれぞれ分離して配置されている。ここで、発光画素とは、一の基板電極20と、一の対向電極40と、これらに挟持された発光層を含む有機物層30とを含み、これに所望の色を実現するため、必要に応じてカラーフィルタを備えたものであって、独立に点燈、非点燈の制御が可能な箇所のことを意味する。図1に示す発光画素をX-Yマトリクス上に配置し、所望の画素を点燈させることによりパターンや文字を表示することができる。

【0013】また、発光層が、青色発光層31、緑色発光層32、および赤色発光層33をこの順に有するものであり、また青色発光層31が、青色発光体に青色蛍光体を含有させた領域を有し、緑色発光層32が、青色発光体または緑色発光体に緑色蛍光体を含有させた領域を有し、かつ赤色発光層33が、青色発光体に赤色蛍光体を含有させた領域を有するものとしている。

【0014】ここで、青色発光体とは、固体状態で380～480nmの蛍光ピークを有する有機化合物を意味する。また、緑色発光体とは、固体状態で480～580nmの蛍光ピークを有する有機化合物を意味する。また、青色蛍光体とは、溶液状態での蛍光ピーク波長が、380～480nmである有機化合物を意味する。また、緑色蛍光体とは、溶液状態での蛍光ピーク波長が、480～580nmである有機化合物を意味する。また、赤色蛍光体とは、溶液状態での蛍光ピーク波長が、580～650nmである有機化合物を意味する。

【0015】また、蛍光体の発光体に対する含有割合は、0.1～10モル%が好ましく、さらに好ましくは、0.3～5モル%である。0.1モル%未満であると、蛍光体の発光強度が十分得られず、10モル%を超えると、蛍光の濃度消光が起り発光強度の低下や発光波長のずれが起る。

【0016】また、発光体と蛍光体とを含有する三つの

領域のそれぞれの厚さは、0.1～50nmであることが好ましく、5～40nmであることがさらに好ましい。0.1nm未満であると、薄膜が層を成さず、50nmを超えると、駆動電圧が上昇する。

【0017】さらに、前記発光体と蛍光体とを含有する三つの領域のうち各二つが形成する界面において、対向する二つの領域のそれぞれが、共通の有機化合物を含有する部分を含むことが好ましい。すなわち、緑色発光層が青色発光体に緑色蛍光体を含む構成であると、発光体として共通の材料が選べ素子作製上手間が軽減されるこからさらに好ましい。

【0018】この実施形態においては、通常の有機EL素子におけるように、有機物層30、として、発光層31、32、33に加えて、正孔注入層34および電子注入層35を配設している。この層34、35はそれぞれ二層以上であってもよい。また、この実施形態においては、発光層31、32、33をB/G/Rの積層としているが、その一回以上の繰り返し（たとえば、B/G/R/B/G/R等）を積層したものであってもよい。B、G、Rの積層順は、光を取り出す側からB/G/Rの順にすることが光の再吸収が小さいことから好ましい。

【0019】以下、本発明の有機EL発光装置に用いられる各構成要素について具体的に説明する。

#### 【0020】1. 基板

本発明で用いられる基板としては、透明性を問わず、多色発光装置を支えるに十分な剛直な材料が好ましい。特に、高精細な表示をする場合には、有機EL素子と蛍光体層とのギャップが大きいと有機EL素子の発光が隣接する蛍光体層に吸収され所望の発光色が得られず、視野角を小さくしてしまう場合がある。そのため、透明な絶縁層の厚さを小さくする必要があるが、厚さを小さくすると、多色発光装置の耐衝撃性等の機械的強度を弱めることになる。本発明では、基板を配置することにより多色発光装置を補強して耐衝撃性等の機械的強度を高めている。

【0021】具体的な材料としては、例えば、ガラス板、セラミック板、プラスチック板（ポリカーボネート、アクリル、塩化ビニル、ポリエチレンテレフタレート、ポリイミド、ポリエステル樹脂等）、金属板、および後述する絶縁層と同じ材料からなる板等を挙げることができるが、もなくなく、耐衝撃性等の機械的強度に優れた金属が好ましい。金属を用いることにより透明な絶縁層の厚さが小さく、基板の金属の厚さが小さい場合でも相当の補強効果がある。具体的には、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブデン、シリコン、ゲルマニウム、タンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属または合金からなる材料が好ましい。このような材料は、エッチング処理等により、空隙形成の加工性に優

れ、しかも基板として剛直な材料であって、コスト的に安価な材料であるので好ましい。また、先述のように、空隙を形成した際に、空隙の側面に金属光沢を出すこともできるので、蛍光体層からの発光を反射または散乱して、効率よく光を取り出し視認性に優れた多色発光装置を得ることができる。基板の板厚は、特に制限はないが、高精細表示を行う多色発光装置については空隙の形成を高精細にしなければならないので、多色発光装置を支える剛直さがあつて可能な限り薄くすることが必要である。通常は $5\text{ }\mu\text{m}\sim 5\text{ mm}$ の範囲であり、好ましくは、 $7\text{ }\mu\text{m}\sim 700\text{ }\mu\text{m}$ さらに好ましくは、 $10\text{ }\mu\text{m}\sim 30\text{ }\mu\text{m}$ である。

### 【0022】2. 基板電極

基板電極としては、仕事関数の大きい(4 eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物またはこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI、ITO、SnO<sub>2</sub>、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。基板電極は、これらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で、薄膜を形成させることにより作製することができる。このように発光層からの発光を基板から取り出す場合、基板電極の発光に対する透過率が10%より大きくすることが好ましい。また、基板電極のシート抵抗は、数百Ω/□以下が好ましい。基板電極の膜厚は材料にもよるが、通常 $10\text{ nm}\sim 1\text{ }\mu\text{m}$ 、好ましくは $10\sim 200\text{ nm}$ の範囲である。

### 【0023】3. 対向電極

対向電極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウムカリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム・銀合金、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、アルミニウム・リチウム合金、インジウム、希土類金属などが挙げられる。この対向電極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、対向電極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましく、膜厚は通常 $10\text{ nm}\sim 1\text{ }\mu\text{m}$ 、 $50\sim 200\text{ nm}$ の範囲が好ましい。なお、本発明に用いられるEL素子においては、該基板電極または対向電極のいずれか一方が透明または半透明であることが、発光を透過するため、発光の取り出し効率がよいので好ましい。

【0024】本発明においては、基板電極または対向電極の少なくとも一方は、光透過性であることが、発光を取り出すことから好ましく、またその光透過性電極の、発光層を含む有機物層が形成されていない側の面にカラーフィルタやブラックマトリックスを配設することが色純度を向上させること等から好ましい。

### 【0025】本発明に用いられるカラーフィルタとして

は、たとえば、下記の色素のみまたは、色素をバインダー樹脂中に溶解または分散させた固体状態のものを挙げることができる。

【0026】赤色(R) 色素：ペリレン系顔料、レーキ顔料、アゾ系顔料、キナクリドン系顔料、アントラキノン系顔料、アントラセン系顔料、イソインドリン系顔料、イソインドリノン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0027】緑色(G) 色素：ハロゲン多置換フタロシアニン系顔料、ハロゲン多置換銅フタロシアニン系顔料、トリフェルメタン系塩基性染料、イソインドリン系顔料、イソインドリノン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0028】青色(B) 色素：銅フタロシアニン系顔料、インダンスロン系顔料、インドフェノール系顔料、シアニン系顔料、ジオキサジン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0029】一方、バインダー樹脂は、透明な(可視光50%以上)材料が好ましい。たとえば、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂(高分子)が挙げられる。

【0030】なお、カラーフィルタを平面的に分離配置するために、フォトリソグラフィー法が適用できる感光性樹脂も選ばれる。たとえば、アクリル酸系、メタクリル酸系、ポリケイ皮酸ビニル系、環ゴム系等の反応性ビニル基を有する光硬化型レジスト材料が挙げられる。また、印刷法を用いる場合には、透明な樹脂を用いた印刷インキ(メジウム)が選ばれる。たとえば、ポリ塩化ビニル樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂のモノマー、オリゴマー、ポリマーまた、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を用いることができる。

【0031】カラーフィルタが主に色素からなる場合は、所望のカラーフィルタパターンのマスクを介して真空蒸着またはスパッタリング法で成膜され、一方、色素とバインダー樹脂からなる場合は、蛍光色素と上記樹脂およびレジストを混合、分散または可溶化させ、スピンドルコート、ロールコート、キャスト法等の方法で製膜し、フォトリソグラフィー法で所望のカラーフィルタパターンでパターニングしたり、印刷等の方法で所望のカラーフィルタのパターンでパターニングするのが一般的である。

【0032】それぞれのカラーフィルタの膜厚と透過率は、下記とすることが好ましい。

R : 膜厚 0.5 ~ 5.0 μm (透過率 50% 以上 / 610 nm), G : 膜厚 0.5 ~ 5.0 μm (透過率 50% 以上 / 545 nm), B : 膜厚 0.2 ~ 5.0 μm (透過率 50% 以上 / 460 nm)

【0033】また、特にカラーフィルタが色素とバインダー樹脂からなるものは、色素の濃度が、カラーフィルタが問題なくパターニングできて、かつ、有機EL素子の発光を十分透過できる範囲であればよい。色素の種類にもよるが、使用的バインダー樹脂を含めたカラーフィルタ膜中に色素が 5 ~ 50 重量% 含まれる。

【0034】本発明に用いられるブラックマトリックスとしては、たとえば、下記の金属および金属酸化物薄膜、並びに黒色色素を挙げることができる。金属および金属酸化物薄膜の具体例としては、クロム (Cr)、ニッケル (Ni)、銅 (Cu) 等の金属およびその酸化物の薄膜を挙げることができる。上記金属および金属酸化物の混合物としては、光学濃度 3.0 以上 (膜厚 100 ~ 3000 オングストローム) のものが好ましい。

【0035】黒色色素の具体例としては、カーボンブラック、チタンブラック、アニリンブラックまたはカラーフィルタの色素を混合して、黒色化したもの、またはカラーフィルタと同じように上記色素をバインダー樹脂中に溶解または分散させた固体状態のものを挙げができる。

【0036】金属および金属酸化物薄膜は、スパッタリング法、蒸着法、CVD 法等により絶縁性基板全面か、マスキングの手法により少なくとも表示部全面に成膜後、フォトリソグラフィー法によりパターニングを行って、ブラックマトリックスのパターンを形成することができる。

【0037】黒色色素を用いた場合は、カラーフィルタの場合と同様にパターニングして、ブラックマトリックスを形成することができる。

#### 【0038】4. 発光層を含む有機物層

##### (1) 発光層

青色発光体に用いる有機化合物は、特に限定されず、例えば特開平3-231970号公報あるいは国際公開特許WO92/05131号公報、特願平5-170354号明細書、特願平5-129438号明細書に記載されている有機化合物の中で、上記青色発光体の蛍光条件を満足するものが挙げられる。好ましいものとしては、特開平3-231970号公報、国際公開特許WO92/05131号公報、特願平5-170345号明細書に記載されている上記青色発光体の蛍光条件を満たすものと、特願平5-129438号明細書に記載されている適当な化合物との組合せ、さらには後述する正孔注入輸送層に用いる化合物のなかで、上記青色発光体の蛍光条件を満足するものを挙げができる。次に、特開

平3-231970号公報、国際公開特許WO92/05131号公報に記載されている上記青色発光体の蛍光条件を満たす化合物としては、前記一般式 (I)

##### 【0039】

##### 【化1】

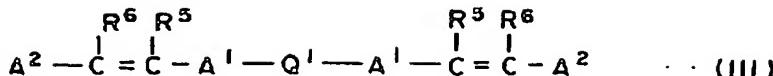
【0040】[式中、R<sup>1</sup> ~ R<sup>4</sup> は、それぞれ水素原子、炭素数 1 ~ 6 のアルキル基、炭素数 1 ~ 6 のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 18 のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 18 のアリール基、置換もしくは無置換の芳香族複素環式基、置換もしくは無置換のシクロヘキシル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 18 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のピリジル基を示す。ここで、置換基は炭素数 1 ~ 6 のアルキル基、炭素数 1 ~ 6 のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 18 のアラルキル基、炭素数 6 ~ 18 のアリールオキシ基、炭素数 1 ~ 6 のアシル基、炭素数 1 ~ 6 のアシルオキシ基、カルボキシル基、スチリル基、炭素数 6 ~ 20 のアリールカルボニル基、炭素数 6 ~ 20 のアリールオキシカルボニル基、炭素数 1 ~ 6 のアルコキシカルボニル基、ビニル基、アニリノカルボニル基、カルバモイル基、フェニル基、ニトロ基、水酸基あるいはハログン原子を示す。これらの置換基は単一でも複数でもよい。また、R<sup>1</sup> ~ R<sup>4</sup> は同一でも、また互いに異なっていてもよく、R<sup>1</sup> と R<sup>2</sup> 及び R<sup>3</sup> と R<sup>4</sup> は互いに置換している基と結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。Ar は置換もしくは無置換の炭素数 6 ~ 20 のアリーレン基を表し、单一置換されていても、複数置換されていてもよく、また結合部位は、オルト、パラ、メタいずれでもよい。なお、置換基は前記と同じである。また、アリーレン基の置換基同士が結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。但し、Ar が無置換フェニレンの場合、R<sup>1</sup> ~ R<sup>4</sup> は、それぞれ炭素数 1 ~ 6 のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 18 のアラルキル基、置換もしくは無置換のナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基、アリールオキシ基より選ばれたものである。] で表されるジスチリルアリレーン系化合物、一般式 (II)

##### A - Q - B . . . (II)

[式中、A 及び B は、それぞれ上記一般式 (I) で表される化合物から 1 つの水素原子を除いた一価基を示し、同一であっても異なってもよい。また、Q は共役系を切る二価基を示す。] で表される芳香族メチリデン化合物及び一般式 (II)

##### 【0041】

##### 【化2】



【0042】[式中、A<sup>1</sup>は置換もしくは無置換の炭素数6~20のアリーレン基又は二価の芳香族複素環式基を示す。結合位置はオルト、メタ、パラのいずれでもよい。A<sup>2</sup>は置換もしくは無置換の炭素数6~20のアリール基又は一価の芳香族複素環式基を示す。R<sup>5</sup>及びR<sup>6</sup>は、それぞれ水素原子、置換もしくは無置換の炭素数6~20のアリール基、シクロヘキシル基、一価の芳香族複素環式基、炭素数1~10のアルキル基、炭素数7~20のアラルキル基又は炭素数1~10のアルコキシ基を示す。なお、R<sup>5</sup>、R<sup>6</sup>は同一でも異なってよい。ここで、置換基とは、アルキル基、アリールオキシ基、アミノ基又はこれらの基を有するもしくは有しないフェニル基であり、該置換基は単一でも複数でもよい。R<sup>5</sup>の各置換基はA<sup>1</sup>と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよく、同様にR<sup>6</sup>の各置換基はA<sup>2</sup>と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい。また、Q<sup>1</sup>は前記と同じである。]で表される芳香族メチリディン化合物が挙げられる。

【0043】ここで、一般式(I)中のR<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>は前述の如く同一でも異なってもよく、それぞれ水素原子、炭素数1~6のアルキル基(メチル基、エチル基、n-ブロピル基、イソブロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、イソペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、イソヘキシル基)、炭素数1~6のアルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等)、炭素数1~8のアラルキル基(ベンジル基、フェネチル基等、炭素数6~18のアリール基(フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基等)、シクロヘキシル基、芳香族複素環式基(ビリジル基、キノリル基)、炭素数6~8のアリールオキシ基(フェノキシ基、ビフェニルオキシ基、ナフチルオキシ基等)を示す。

【0044】また、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>は、これらに置換基の結合したものでもよい。即ち、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>はそれぞれ置換基含有フェニル基、置換基含有アラルキル基、置換基含有シクロヘキシル基、置換基含有ビフェニル基、置換基含有ナフチル基を示す。ここで、置換基は炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基、炭素数7~18のアラルキル基、炭素数6~18のアリールオキシ基、炭素数1~6のアシル基、炭素数1~6のアシルオキシ基、カルボキシル基、スチリル基、炭素数6~20のアリールカルボニル基、炭素数6~20のアリールオキシカルボニル基、炭素数1~6のアルコキシカルボニル基、ビニル基、アニリノカルボニル基、カルバモイル基、フェニル基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子であり、複数置換されていてもよい。したがって、

例えば、置換基含有アラルキル基は、アルキル基置換アラルキル基(メチルベンジル基、メチルフェネチル基等)、アルコキシ基置換アラルキル基(メトキシベンジル基、エトキシフェネチル基等)、アリールオキシ基置換アラルキル基(フェノキシベンジル基、ナフチルオキシフェネチル基等)、フェニル基置換アラルキル基(フェニルフェネチル基等)、上記置換基含有フェニル基は、アルキル基置換フェニル基(トリル基、ジメチルフェニル基、エチルフェニル基など)、アルコキシ基置換フェニル基(メトキシフェニル基、エトキシフェニル基など)アリールオキシ基置換フェニル基(フェノキシフェニル基、ナフチルオキシフェニル基等)あるいはフェニル基置換フェニル基(つまり、ビフェニリル基)である。また、置換基含有シクロヘキシル基は、アルキル基置換シクロヘキシル基(メチルシクロヘキシル基、ジメチルシクロヘキシル基、エチルシクロヘキシル基等)、アルコキシ基置換シクロヘキシル基(メトキシシクロヘキシル基、エトキシシクロヘキシル基等)あるいはアリールオキシ基置換シクロヘキシル基(フェノキシシクロヘキシル基、ナフチルオキシシクロヘキシル基)、フェニル基置換シクロヘキシル基(フェニルシクロヘキシル基)である。置換基含有ナフチル基は、アルキル基置換ナフチル基(メチルナフチル基、ジメチルナフチル基等)、アルコキシ基置換ナフチル基(メトキシナフチル基、エトキシナフチル基等)あるいはアリールオキシ基置換ナフチル基(フェノキシナフチル基、ナフチルオキシナフチル基)、フェニル基置換ナフチル基(フェニルナフチル基)である。

【0045】上記R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>としては、上述したもののうち、それぞれ炭素数1~6のアルキル基、アリールオキシ基、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基が好ましい。これらは置換あるいは無置換のいずれでもよい。また、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>は同一でも、また互いに異なっていてもよく、R<sup>1</sup>とR<sup>2</sup>及びR<sup>3</sup>とR<sup>4</sup>は互いに置換している基と結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。

【0046】一方、一般式(I)中のA<sub>r</sub>は置換もしくは無置換の炭素数6~20のアリーレン基を表し、置換もしくは無置換のフェニレン基、ビフェニレン基、p-テルフェニレン基、ナフチレン基、ターフェニレン基、ナフタレンジイル基、アントラセンジイル基、フェナントレンジイル基、フェナレンジイル基等のアリーレン基であり、無置換でも置換されていてもよい。又、メチリディン(=C=CH-)の結合位置はオルト、メタ、パラ等どこでもよい。但し、A<sub>r</sub>が無置換フェニレンの場合、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>は炭素数1~6のアルコキシ基、炭素数

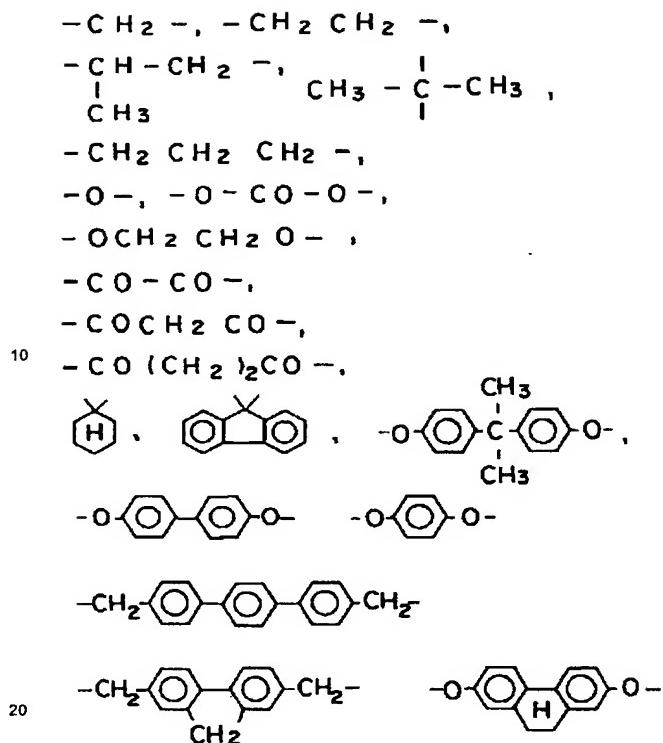
7～18のアラルキル基、置換あるいは無置換のナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基、アリールオキシ基より選ばれたものである。置換基はアルキル基(メチル基、エチル基、n-ブロピル基、イソブロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、イソペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、イソヘキシル基等)、アルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブチルオキシ基、イソブチルオキシ基、sec-ブチルオキシ基、t-ブチルオキシ基、イソペンチルオキシ基、t-ペンチルオキシ基)、アリールオキシ基、(フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アシリル基(ホルミル基、アセチル基、プロピオニル基、ブチリル基等)、アシリルオキシ基、アラルキル基(ベンジル基、フェネチル基等)、フェニル基、水酸基、カルボキシル基、アリノカルボニル基、カルバモイル基、アリールオキシカルボニル基、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、ブトキシカルボニル基、ニトロ基、ハログン原子であり、単一置換でも複数置換されていてもよい。

【0047】前記一般式(I)で表されるメチリディン芳香族化合物は、1分子中に2つのメチリディン( $=C=CH-$ )基を有し、このメチリディン基の幾何異性によって、4通りの組合せ、すなわち、シース-シス、トランスクシス、シーストランス及びトランスクトランスの組合せがある。本発明に用いられるEL素子における青色発光体は、それらのいずれのものであってもよいし、幾何異性体の混合したものでもよい。特に好ましくは、全てトランスク体のものである。また、上記置換基は、置換基の間で結合し、置換、無置換の飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい。

【0048】一般式(II)におけるA及びBは、それぞれ上記一般式(I)で表される化合物から1つの水素原子を除いた一価基を示し、同一であっても異なってもよいものである。ここで、一般式(II)におけるQは共役系を切る二価基を示す。ここで、共役とは、 $\pi$ 電子の非極在性によるもので、共役二重結合あるいは不対電子又は孤立電子対によるものも含む。Qの具体例としては、

【0049】

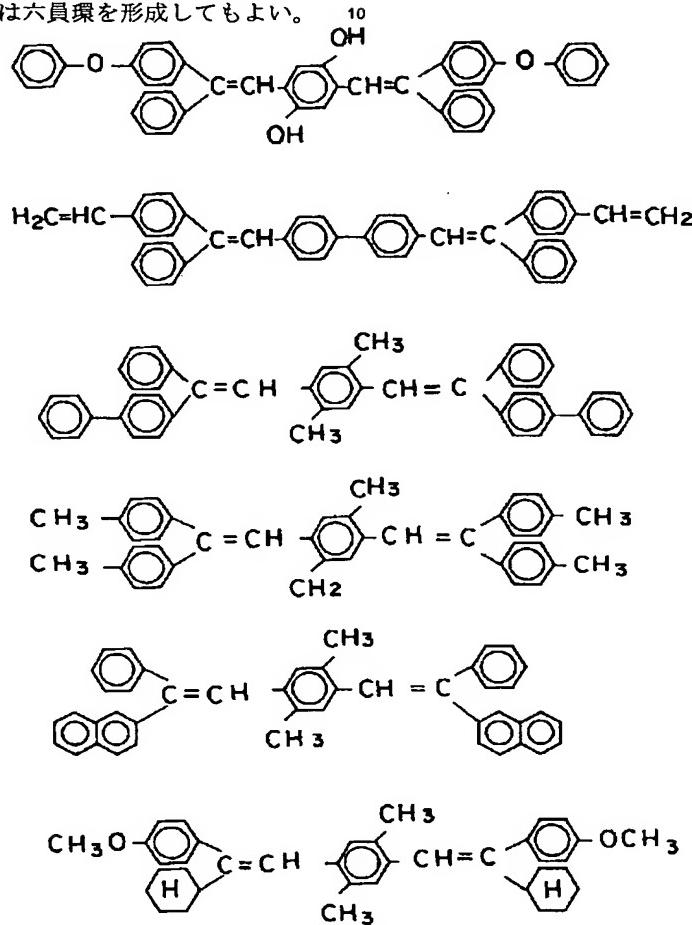
【化3】



【0050】が挙げられる。このように共役系を切る二価の基を用いる理由は、上記で示されるAあるいはB(即ち、一般式(I)の化合物)を、単独で本発明の有機EL素子として用いた場合に得られるEL発光色と、一般式(II)で表される化合物を本発明の有機EL素子として用いた場合に得られるEL発光色とが変わらぬようにするためである。つまり、一般式(I)又は一般式(II)で表される青色発光体が、短波長化あるいは長波長化したりすることはないようになるためである。また、共役系を切り二価基で接続するとガラス転移温度( $T_g$ )は、上昇することが確認でき、均一なピンホールフーリーの微結晶あるいはアモルファス性薄膜が得られることができ、発光均一性を向上させている。更に、共役系を切る二価基で結合していることにより、EL発光が長波長化することなく、また、合成あるいは精製が容易にできる長所を備えている。

【0051】また、一般式(III)中のA<sup>1</sup>は置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリーレン基又は二価の芳香族複素環式基、A<sup>2</sup>は置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基(フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基等)又は一価の芳香族複素環式基を示す。R<sup>5</sup>及びR<sup>6</sup>は、それぞれ水素原子、置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基、シクロヘキシル基、一価の芳香族複素環式基、炭素数1～10のアルキル基(メチル基、エチル基、n-ブロピル基、イソブロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、イソペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、イソヘキシル基等)、炭素数7～20のアラ

ルキル基（ベンジル基、フェネチル基等）又は炭素数1～10のアルコキシ基（メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等）を示す。なお、R<sup>5</sup>、R<sup>6</sup>は同一でも異なってもよい。ここで、置換基とは、アルキル基、アリールオキシ基、アミノ基又はこれらの基を有するもしくは有しないフェニル基であり、該置換基は單一でも複数でもよい。R<sup>5</sup>の各置換基はA<sup>1</sup>と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい、同様にR<sup>6</sup>の各置換基はA<sup>2</sup>と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい。

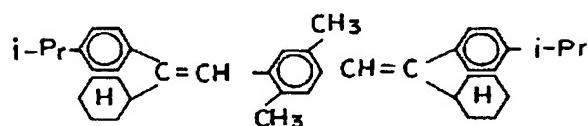
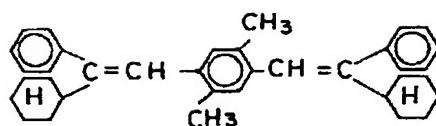


【0053】

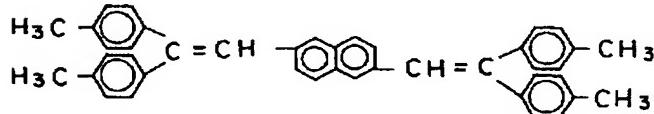
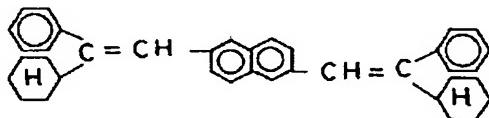
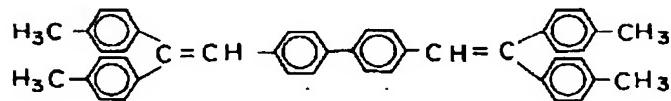
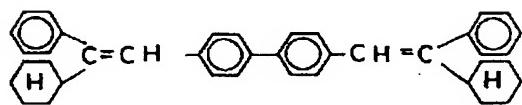
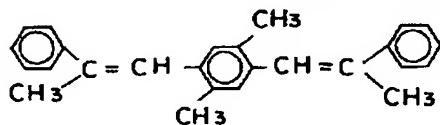
また、Qは、上記と同様に共役を切る二価基を表す。さらに、該A<sup>1</sup>の結合はオルト、メタ、パラのいずれでもよい。さらに、本発明において、上記の一般式(I)、一般式(II)又は一般式(III)で表される有機化合物は、CIE色度座標における青紫、紫青、青、緑青もしくは青緑の発光を呈する化合物であることが必要である。具体的には、

【0052】

【化4】

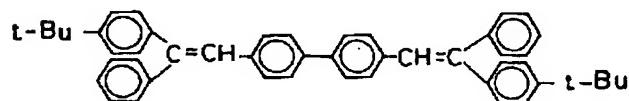
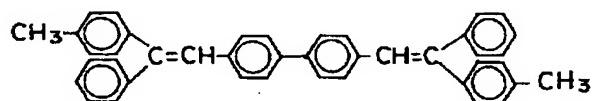
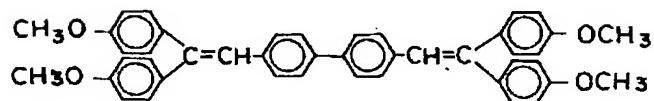
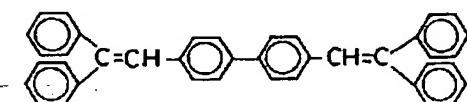
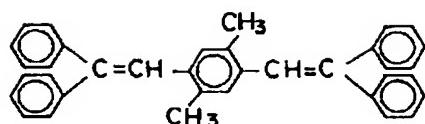


i-Pr: イソブロヒル基, 以下同様

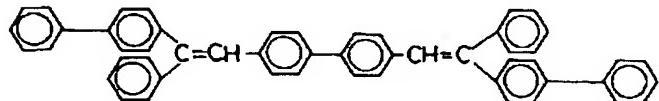


【0054】

【化6】

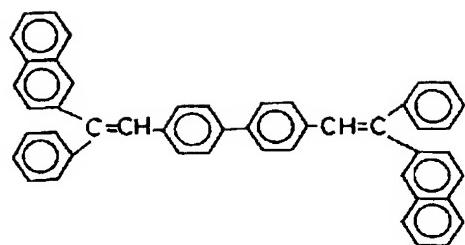


t-Bu: t-ブチル基, 以下同様

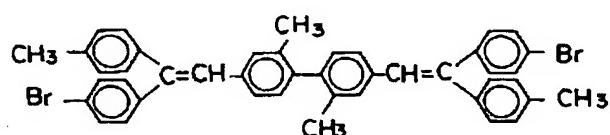
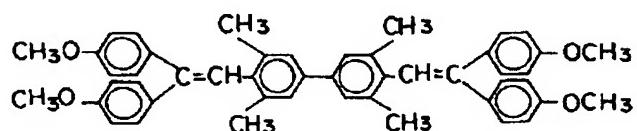
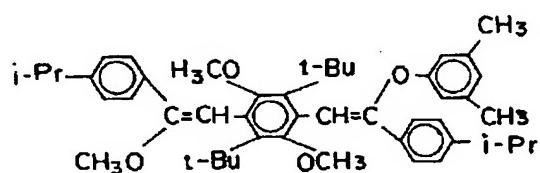
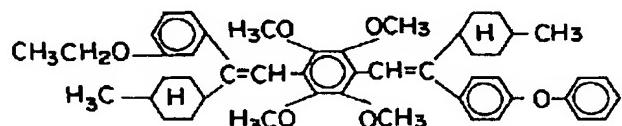
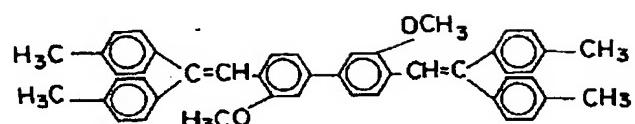
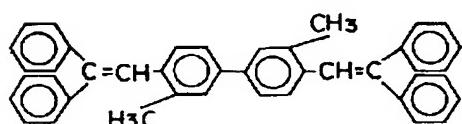
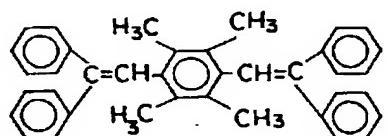
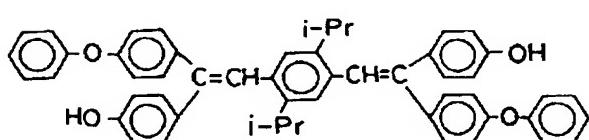
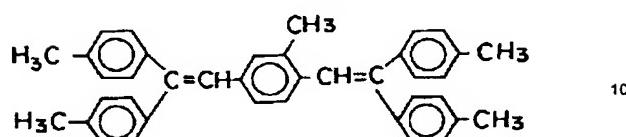


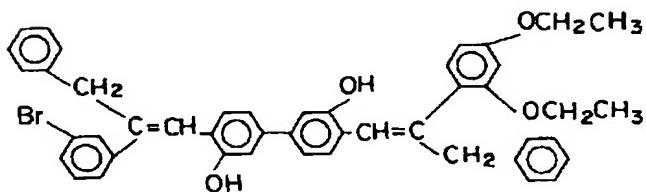
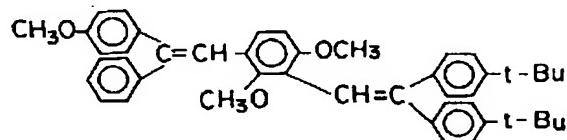
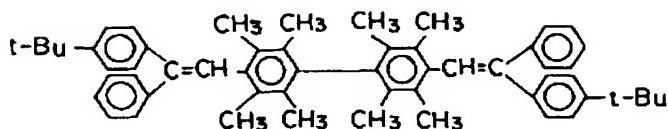
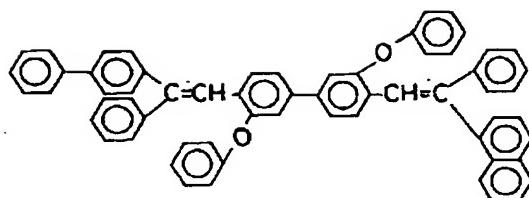
【0055】

【化7】



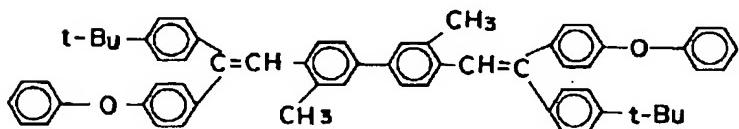
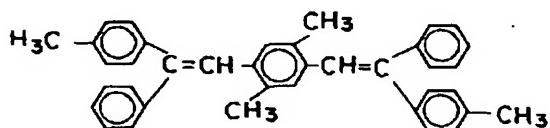
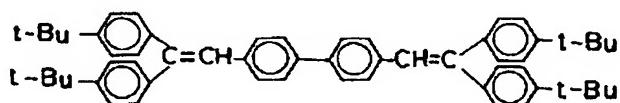
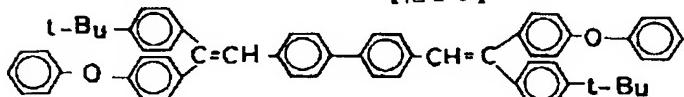
【0056】  
【化8】





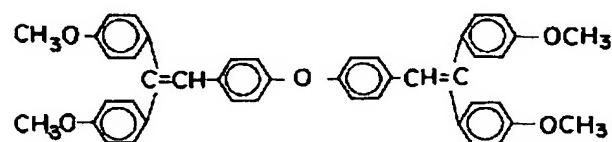
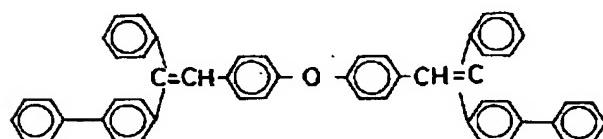
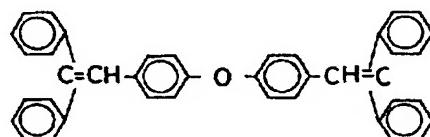
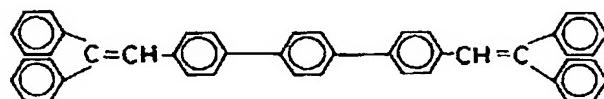
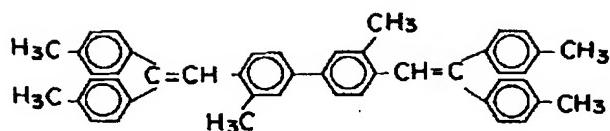
【0058】

【化10】

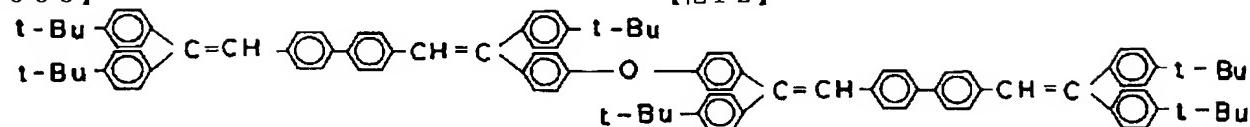


【0059】

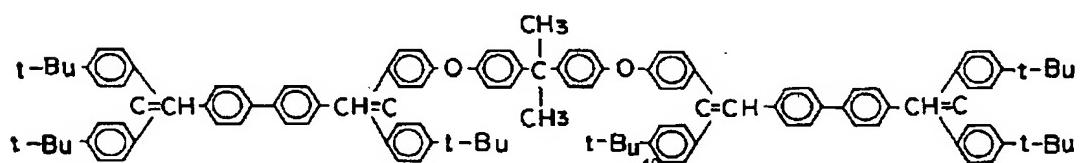
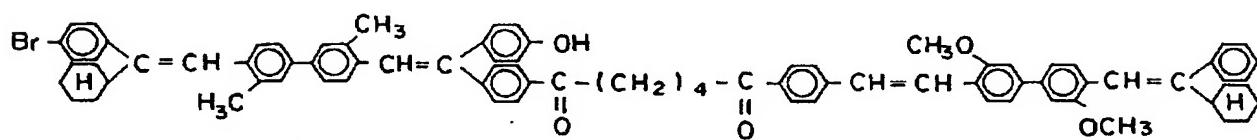
【化11】



[0060]



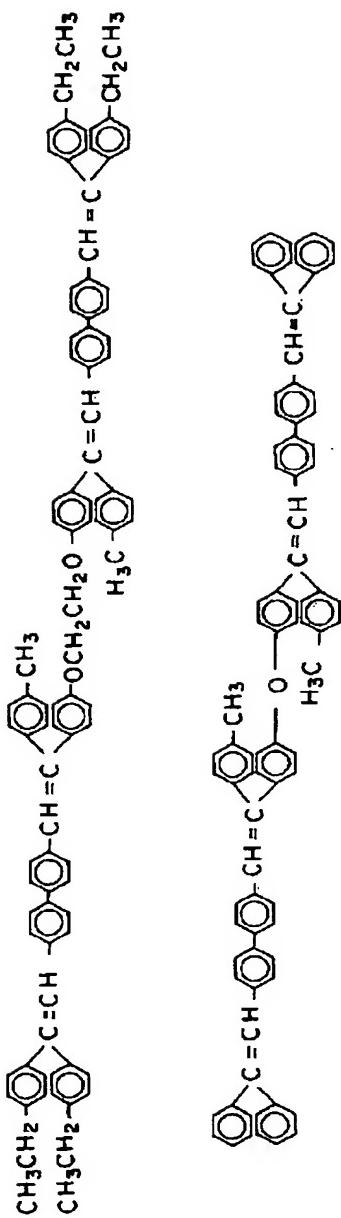
【化12】



[0061]

【化13】

27

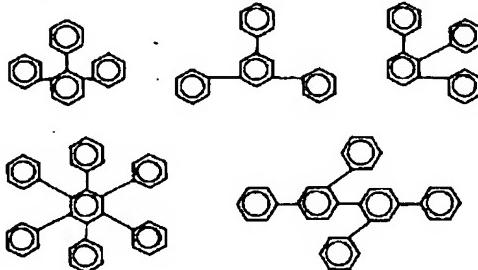


10

【0062】などである。他の有機化合物としては、

【0063】

【化14】



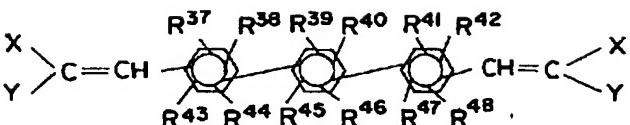
20

【0064】なども挙げられる。また、特願平5-170354号明細書に記載されている上記青色発光体の蛍光条件を満たす化合物としては、一般式(XI)

【0065】

【化15】

30

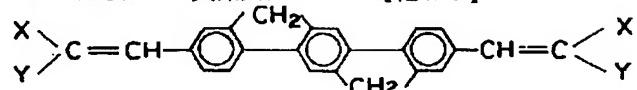


【0066】〔式中、R<sup>37</sup>～R<sup>48</sup>は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数1～6のアルキル基を示す。但し、R<sup>37</sup>～R<sup>48</sup>のうち少なくとも1つは炭素数1～6のアルキル基である。また、R<sup>38</sup>とR<sup>39</sup>、R<sup>40</sup>とR<sup>41</sup>、R<sup>44</sup>とR<sup>45</sup>、R<sup>46</sup>とR<sup>47</sup>は、互いに結合して飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい。X及びYはそれぞれ独立に置換又は無置換の炭素数6～20のアリール基を示す。XとYは置換基と結合して置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは六員環を形成してもよい。ここで、置換基としては炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数6～18のアリールオキシ基、フェニル基、アミノ基、シアノ基、

ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子を示す。これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。〕で表されるターフェニレン誘導体のスチリル化合物を挙げることができる。

【0067】ここで、一般式(XI)において、R<sup>37</sup>～R<sup>48</sup>は、それぞれ独立に水素原子あるいはメチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、s e c-ブチル基、t-ブチル基、イソペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、n-ヘキシル基、イソヘキシル基などの炭素数1～6のアルキル基を示す。但し、R<sup>37</sup>～R<sup>48</sup>のうち少なくとも1つは炭素数1～6のアルキル基であり、特にメチル基又

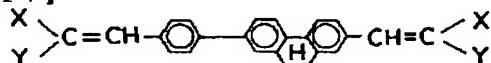
はエチル基が好ましい。また、R<sup>38</sup>とR<sup>39</sup>、R<sup>40</sup>とR<sup>41</sup>、R<sup>44</sup>とR<sup>45</sup>、R<sup>46</sup>とR<sup>47</sup>は、互いに結合して飽和もしくは不飽和の五員環又は飽和もしくは不飽和の六員環を形成してもよい。飽和もしくは不飽和の五員環又は



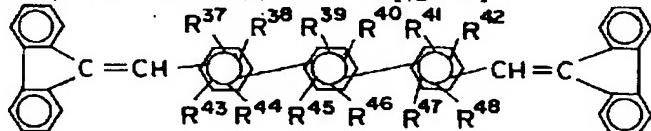
【0069】などが挙げられ、R<sup>46</sup>とR<sup>47</sup>で飽和六員環を形成する場合は、

【0070】

【化17】



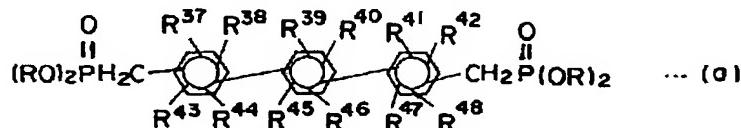
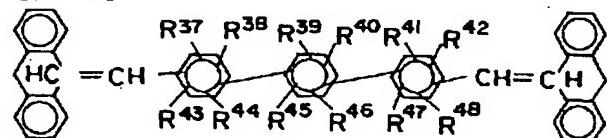
【0071】などが挙げられる。X及びYは、それぞれ独立に置換または無置換のフェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基、アントラリル基、フェナントリル基、ピレニル基、ペリレニル基など炭素数6～20のアリール基を示す。ここで、置換基としては、例えればメチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、イソペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、n-ヘキシル基、イソヘキシル基など



【0073】などが挙げられ、XとYが飽和六員環形成する場合は、

【0074】

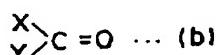
【化19】



【0078】〔式中、Rは炭素数1～4のアルキル基又はフェニル基を示し、R<sup>37</sup>～R<sup>48</sup>は前記と同じである。〕で表されるホスホン酸エステルと、一般式(b)

【0079】

【化21】



【0080】〔式中、X、Yは前記と同じである。〕で

六員環を有するスチリル化合物の例としては、R<sup>38</sup>とR<sup>39</sup>、及びR<sup>46</sup>とR<sup>47</sup>が飽和五員環を形成する場合は、

【0068】

【化16】

の炭素数1～6のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブチルオキシ基、イソブチルオキシ基、sec-ブチルオキシ基、イソペンチルオキシ基、t-ペンチルオキシ基、n-ヘキシルオキシ基などの炭素数1～6のアルコキシ基、フェノキシ基、ナフチルオキシ基など炭素数6～18のアリールオキシ基、フェニル基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子が挙げられる。これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、XとYは置換基と結合して置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を有するスチリル化合物の例としては、XとYが飽和五員環を形成する場合は、

【0072】

【化18】

【0075】などが挙げられる。

【0076】上記一般式(XI)で表されるスチリル化合物は、種々の公知の方法によって製造することができる。具体的には、次の2つの方法が挙げられる。

方法1

一般式(a)

【0077】

【化20】

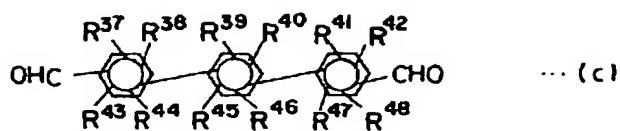
表されるカルボニル化合物を塩基存在下で縮合する方法(Witting反応又はWitting-Horner反応)により合成することができる。

方法2

一般式(c)

【0081】

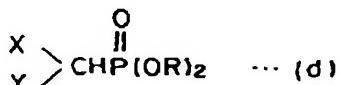
【化22】



【0082】 [式中、R<sup>37</sup>～R<sup>48</sup>は前記と同じである。] で表されるジアルデヒド化合物と一般式 (d)

【0083】

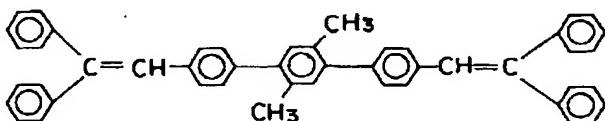
【化23】



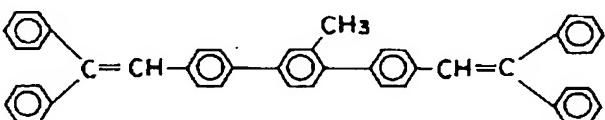
【0084】 [式中、R、X、Yは前記と同じである。] で表されるホスホン酸エステルを塩基存在下で縮合する方法 (Witting 反応又はWitting-Horner反応) により合成することができる。

【0085】 この合成で用いる反応溶媒としては、炭化水素、アルコール類、エーテル類が好ましい。具体的には、メタノール；エタノール；イソプロパノール；ブタノール；2-メトキシエタノール；1, 2-ジメトキシ

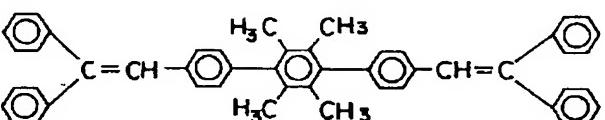
(1)



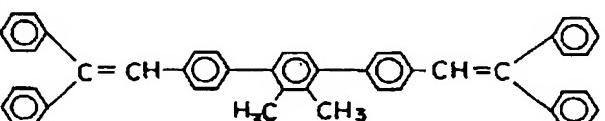
(2)



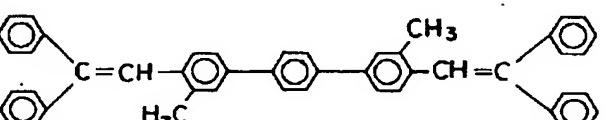
(3)



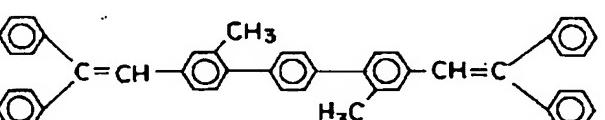
(4)



(5)



(6)



【0088】

エタン；ビス(2-メトキシエチル)エーテル；ジオキサン；テトラヒドロフラン；トルエン；キシレン；ジメチルスルホキシド；N, N-ジメチルホルムアミド；N-メチルピロリドン；1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノンなどが挙げられる。特に、テトラヒドロフラン、ジメチルスルホキシドが好適である。また、縮合剤としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、ナトリウムアミド、水素化ナトリウム、n-ブチルリチウム、ナトリウムメチラート、カリウム-t-ブトキシドなどが好ましく、特にn-ブチルリチウム、カリウム-t-ブトキシドが好ましい。反応温度は、用いる反応原料の種類などにより異なり、一義的に定めることはできないが、通常は0℃～約100℃までの広範囲を指定できる。特に好ましくは0℃～室温の範囲である。

【0086】 以下に、本発明で用いられる上記スチリル化合物の具体例 (1)～(26) を挙げるが、本発明はそれらに限定されるものではない。

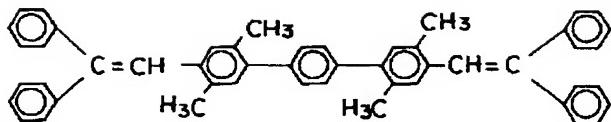
【0087】

【化24】

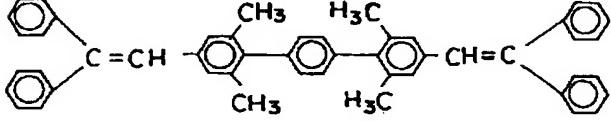
【化25】

【化26】

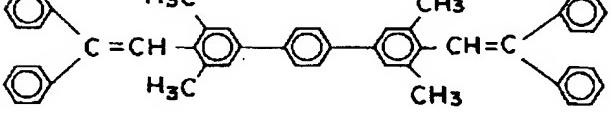
(7)



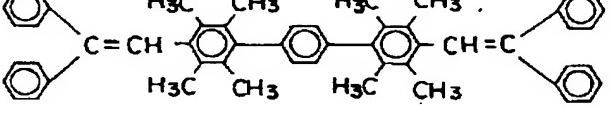
(8)



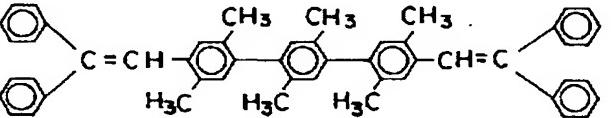
(9)



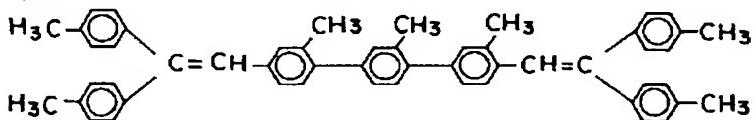
(10)



(11)



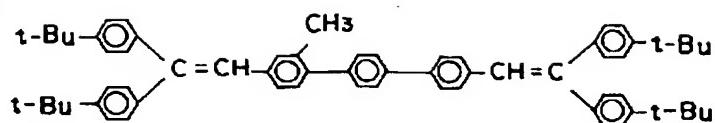
(12)



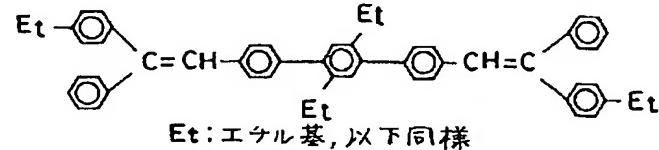
【0089】

【化26】

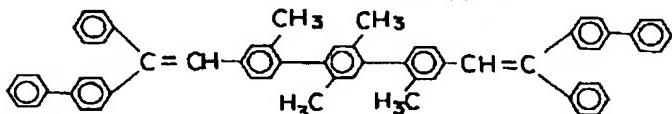
(13)



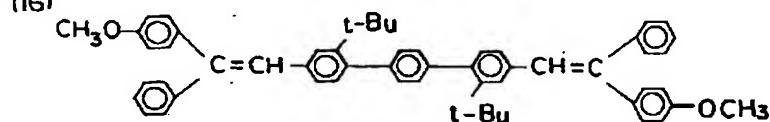
(14)



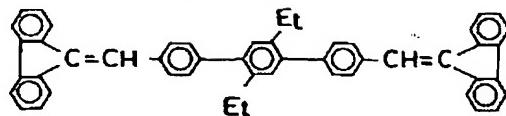
(15)



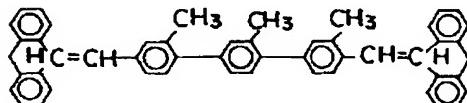
(16)



(17)



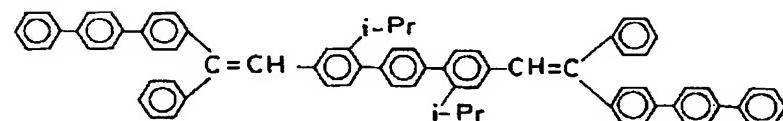
(18)



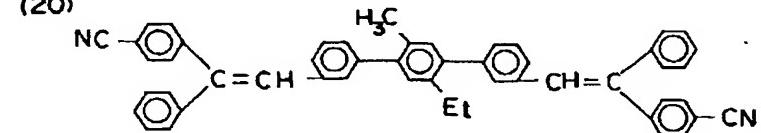
【0090】

【化27】

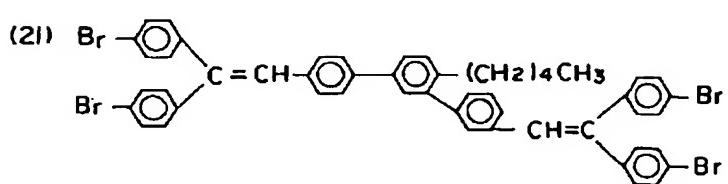
(19)



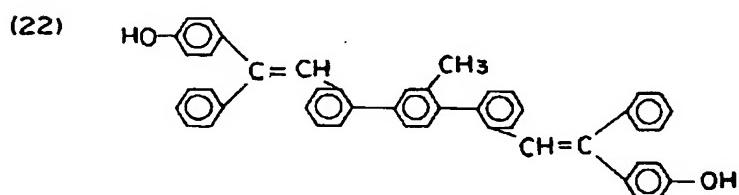
(20)



(21)



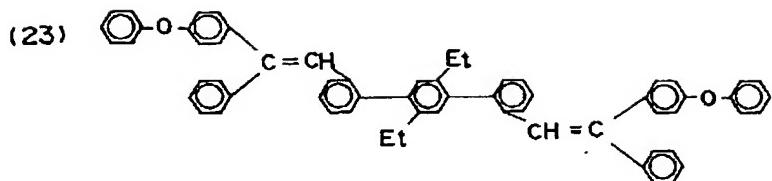
(22)



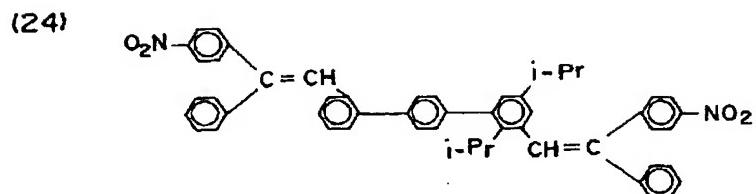
【0091】

【化28】

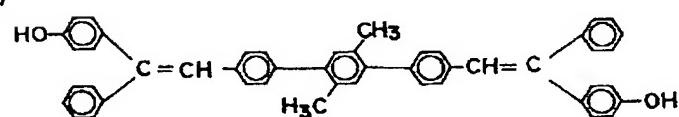
37



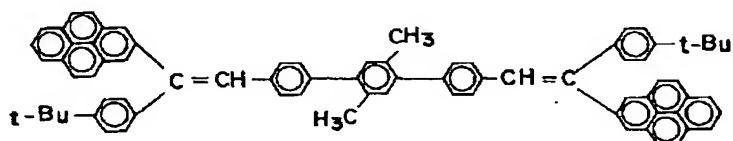
38



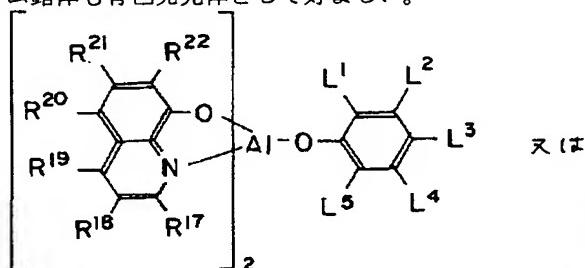
(25)



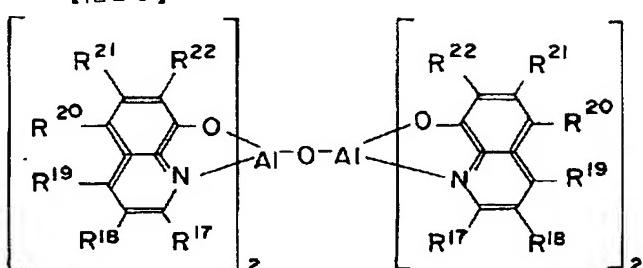
(26)



【0092】その他、下記構造式に示すようなアルミニウム錯体も青色発光体として好ましい。



【0093】  
【化29】



【0094】 [式中、R<sup>17</sup>～R<sup>19</sup>は、各々独立に、水素原子、メチル基等のアルキル基、R<sup>20</sup>～R<sup>22</sup>は各々独立に水素原子、ハロゲン原子、α-ハロアルキル基、α-ハロアルコキシ基、アミド基、カルボニル基、スルfonyl基、カルボニルオキシ基、オキシカルボニル基、アリル基等を示す。また、L<sup>1</sup>～L<sup>5</sup>は、各々独立に、水素原子、炭素数1～12の炭化水素基を示し、L<sup>1</sup>とL<sup>2</sup>、L<sup>2</sup>とL<sup>3</sup>は互いに結合して芳香環を形成していくてもよい。] 等が挙げられる。有機発光層31、32、33の膜厚は、通常、0.1～200nm、好ましくは

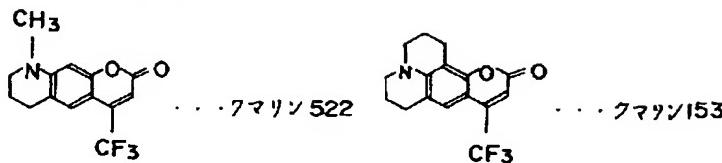
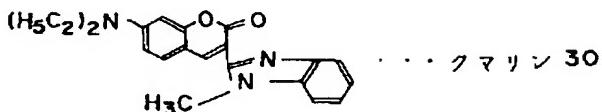
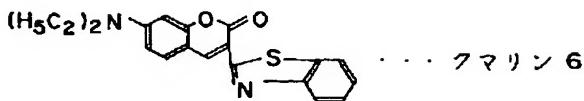
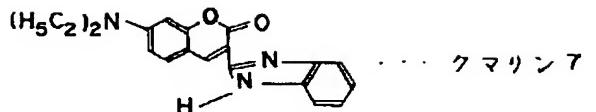
0.1～50nm、さらに好ましくは1～40nmである。

【0095】一方、緑色発光体に用いられる、固体状態の蛍光ピーク波長が480nm以上580nm未満である有機化合物については、特に制限はなく、例えばヨーロッパ公開特許第0281381号公報に記載されているレーザー色素として用いられるクマリン誘導体が挙げられる。具体的には、

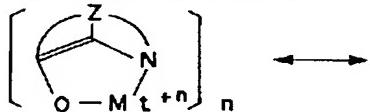
【0096】

【化30】

40



【0097】などである。さらに、特開平3-231970号公報あるいは特願平2-279304号明細書に記載されている有機化合物中で上記緑色発光体の蛍光条件を満足するものが挙げられる。さらに、好ましいものとして、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体を挙げることができる。具体的には、オキシン（一般に8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリン）の



【0099】[式中、 $M_t$ は金属を表し、 $n$ は1～3の整数であり、且つ、Zはその各々の位置が独立であって、少なくとも2以上の縮合芳香族環を完成させるために必要な原子を示す。]ここで、 $M_t$ で表される金属は、一価、二価又は三価の金属とすることができるものであり、例えればリチウム、ナトリウム又はカリウム等のアルカリ金属、マグネシウム又はカルシウム等のアルカリ土類金属、ホウ素又はアルミニウム等の土類金属である。一般に有用なキレート化合物であると知られている一価、二価又は三価の金属はいずれも使用することができる。

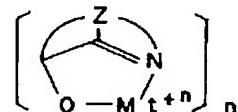
【0100】また、Zは少なくとも2以上の縮合芳香族環の一方がアゾール又はアジンからなる複素環を形成させる原子を示す。ここで、もし必要であれば、上記縮合芳香族環に他の異なる環を付加することが可能である。また、機能上の改善が無いまま嵩ばった分子を付加することを回避するため、Zで示される原子の数は18以下に維持することが好ましい。

【0101】さらに、具体的にキレート化オキシノイド化合物を例示すると、トリス(8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)マグネシウム、ビス(8-キノリノール)亜鉛、ビス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウムオキシド、トリス(8-キノリノール)インジウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、8-キノリノールリチウム、トリス(5-クロロ-8-キノリノール)ガリウム、トリス(2-メチル-8-キノリノール)ガリウム、ビス(5-クロロ-8-キノリノール)カルシウム、5,7-ジクロロ-8-キノリノールアルミニウム、トリス(5,7-ジブロモ-8-ヒドロキシキノリノール)アルミニウム、トリス(7-プロピル-8-キノリノール)一キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)ベリリウム、ビス(2-メチル-8ベリリウムなどがある。

20 キレートを含む金属キレートオキシノイド化合物である。このような化合物は高水準の性能を示し、容易に薄膜形態に成形される。オキシノイド化合物の例は下記構造式を満たすものである。

【0098】

【化31】



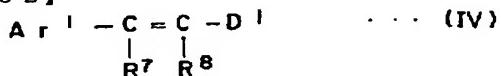
30 キノリノール)亜鉛、ビス(ベンゾー-8-キノリノール)亜鉛、ビス(2-メチル-8-キノリラート)アルミニウムオキシド、トリス(8-キノリノール)インジウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、8-キノリノールリチウム、トリス(5-クロロ-8-キノリノール)ガリウム、トリス(2-メチル-8-キノリノール)ガリウム、ビス(5-クロロ-8-キノリノール)カルシウム、5,7-ジクロロ-8-キノリノールアルミニウム、トリス(5,7-ジブロモ-8-ヒドロキシキノリノール)アルミニウム、トリス(7-プロピル-8-キノリノール)一キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)ベリリウム、ビス(2-メチル-8ベリリウムなどがある。

40 【0102】本発明に用いられる白色有機EL素子においては、青色蛍光体を含有させる。青色蛍光体は溶液状態での蛍光ピーク波長が380 nm以上480 nm未満である有機化合物であれば特に制限はない。特願平5-129438号明細書に記載されているスチルベン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体及びトリススチリルアリーレン誘導体の中から選ばれた少なくとも一種を含有させるのが好ましい。該スチルベン誘導体とは、少なくとも2つの芳香族環を有し、これら芳香族環をビニル基

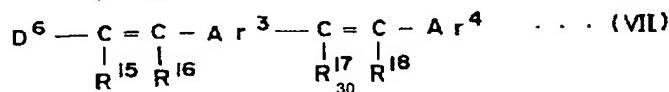
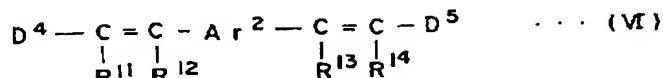
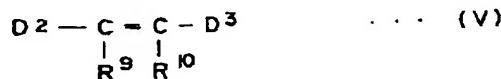
又は置換されたビニル基により結合して構成され、かつ上記芳香族環又はビニル基のいずれかに電子供与性基を有する化合物である。ジスチリルアリーレン誘導体とは、1つのアリーレン基に2つの芳香族環がビニル基又は置換ビニル基を介して結合し、かつ電子供与性基を有する化合物である。トリスチリルアリーレン誘導体とは、1つの三価の芳香族環基に3つの芳香族環がビニル基又は置換ビニル基を介して結合し、かつ電子供与性基を有する化合物である。電子供与性基を分子骨格に有する前記誘導体において該電子供与性基とは、好ましくは炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～10のアリールオキシ基及び炭素数1～30の炭化水素基を有するアミノ基を示す。上記誘導体において、特に好ましいものは下記一般式(IV)～(X)で表される化合物であり、(IV)及び(V)はスチルベン誘導体、(VI)及び(VII)はジスチリルアリーレン誘導体、(VIII)～(X)はトリスチリルアリーレン誘導体を表す。

## 【0103】

## 【化32】



20



【0106】 [式中、 $\text{Ar}^2$ 及び $\text{Ar}^3$ は、それぞれ独立に炭素数6～20のアリーレン基を示し、 $\text{Ar}^4$ は炭素数6～20のアリール基を示す。 $\text{R}^{11}$ ～ $\text{R}^{18}$ は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数6～20のアリール基を示す。ここで、 $\text{Ar}^2$ ～ $\text{Ar}^4$ 、 $\text{R}^{11}$ ～ $\text{R}^{18}$ は、それぞれ独立に無置換でもよいし、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～10のアリールオキシ基、炭素数6～10のアラルキル基又は

【0104】 [式中、 $\text{Ar}^1$ は炭素数6～20のアリール基を示す。 $\text{R}^7$ ～ $\text{R}^{10}$ は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数6～20のアリール基を示す。 $\text{D}^1$ ～ $\text{D}^3$ は、それぞれ独立に電子供与性基で置換された炭素数6～20のアリール基又は炭素数10～30の縮合多環族基を示す。ここで、 $\text{Ar}^1$ 、 $\text{R}^7$ ～ $\text{R}^{10}$ は、それぞれ独立に無置換でもよいし、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～10のアラルキル基又は炭素数1～20の炭化水素基を有するアミノ基で置換されていてもよい。また、この置換基が互いに結合し、飽和もしくは不飽和の五員環ないし六員環を形成してもよい。]

## 【0105】

## 【化33】

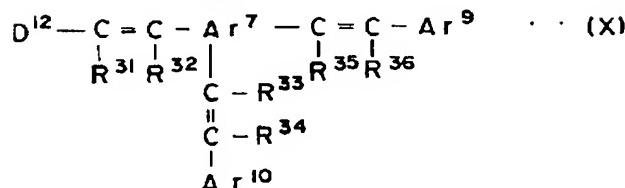
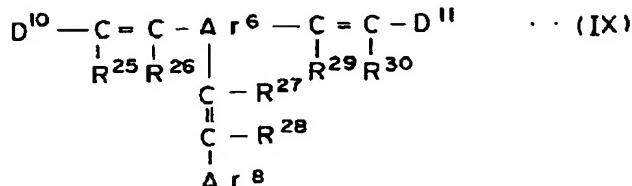
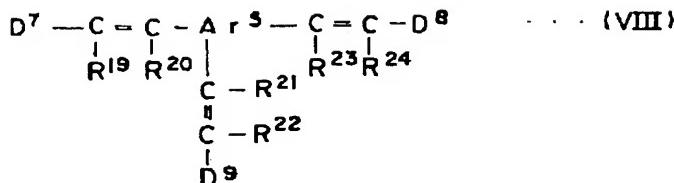
40

炭素数1～20の炭化水素基を有するアミノ基で置換されていてもよい。また、これらの置換基が互いに結合して飽和もしくは不飽和の五員環ないし六員環を形成してもよい。 $\text{D}^4$ ～ $\text{D}^6$ は、それぞれ独立に電子供与性基で置換された炭素数6～20のアリール基又は炭素数10～30の縮合多環族基を示す。]

## 【0107】

## 【化34】

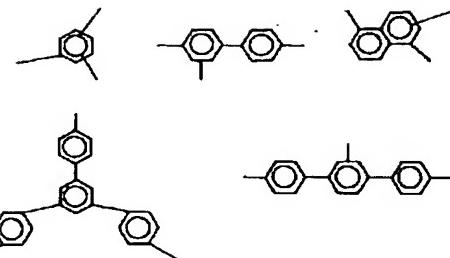
50



【0108】 [式中、 $Ar^5 \sim Ar^7$  は、それぞれ独立に炭素数6~24の三価の芳香族環基を示し、 $Ar^8 \sim Ar^{10}$  は、それぞれ独立に炭素数6~20のアリール基を示す。 $R^{19} \sim R^{36}$  は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数6~20のアリール基を示す。 $D^7 \sim D^{12}$  は、それぞれ独立に電子供与性基で置換された炭素数6~20のアリール基又は炭素数10~30の縮合多環族基を示す。ここで、 $Ar^5 \sim Ar^7$ 、 $R^{19} \sim R^{36}$  は、それぞれ独立に無置換でもよいし、炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~10のアラルキル基、炭素数6~10のアリールアルキル基又は炭素数1~20の炭化水素基を有するアミノ基で置換されていてもよい。また、これらの置換基が互いに結合し、飽和もしくは不飽和の五員環ないし六員環を形成してもよい。] 上記一般式 (IV) ~ (X) におけるアリール基としては、好ましくはフェニル基、ビフェニルイル基、ナフチル基、ピレニル基、ターフェニルイル基、アントラニル基、トリル基、キシリル基、スチルベニル基、チエニル基、ビチエニル基、チオフェン基、ビチオフェン基、ターチオフェン基などが挙げられる。アリレン基としては、好ましくはフェニレン基、ビフェニレン基、ナフチレン基、アントラニレン基、ターフェニレン基、ピレニレン基、スチルベニレン基、チエニレン基、ビチエニレン基などが挙げられる。三価の芳香族環基としては、好ましくは、

【0109】

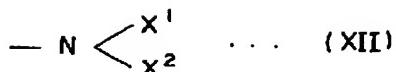
【化35】



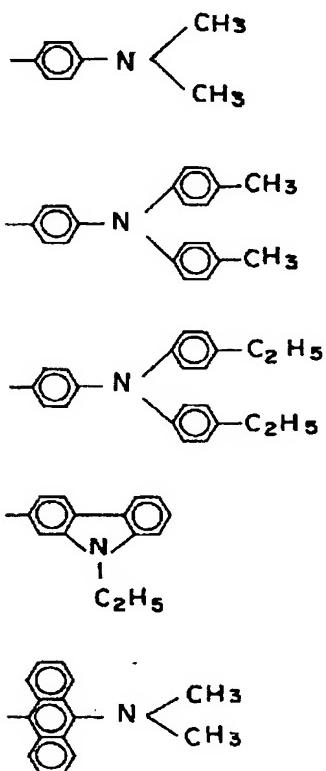
【0110】が挙げられる。また、上記置換基であるアリールオキシ基としては、フェニルオキシ基、ビフェニルオキシ基、ナフチルオキシ基、アントラニルオキシ基、ターフェニルオキシ基、ピレニルオキシ基などが挙げられ、アルキル基としては、メチル基、エチル基、イソプロピル基、ターシャルブチル基、ペンチル基、ヘキシル基などが挙げられる。アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、イソプロポキシ基、ターシャルブトキシ基、ペンチルオキシ基などが挙げられ、炭化水素基を有するアミノ基としては、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、フェニルエチルアミノ基、フェニルメチルアミノ基、ジトリルアミノ基、エチルフェニルアミノ基、フェニルナフチルアミノ基、フェニルビフェニルアミノ基などが挙げられる。前記一般式 (IV) ~ (X) における $D^1 \sim D^{12}$  は、電子供与性基で置換された炭素数1~20のアリール基、又は炭素数10~30の縮合多環族基である。ここで、電子供与性基とは、好ましくは炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~20のアリールオキシ基、炭素数1~30の炭化水素基を有するアミノ基が挙げられ、特に好ましくは炭素数1~30の炭化水素基を有するアミノ基が挙げられる。このアミノ基としては、一般式 (XII)

【0111】

【化36】



【0112】〔式中、 $\text{X}^1$  及び $\text{X}^2$  は、それぞれ独立に炭素数6～20のアリール基、炭素数1～10のアルキル基又は炭素数6～20のアラルキル基を示し、互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。また、 $\text{X}^1$ 、 $\text{X}^2$  には、炭素数1～10のアルキル基、炭素数7～10のアラルキル基、炭素数6～10のアリールオキシ基又は炭素数6～10のアルコキシ基が置換してもよい。さらに、一般式(XII)で表されるアミノ基に置換するアリール基としての $\text{X}^1$ と $\text{X}^2$ が互いに結合した含窒素芳香族環基となってもよい。〕で表されるものが挙げられる。上記電子供与性基としては、例えは

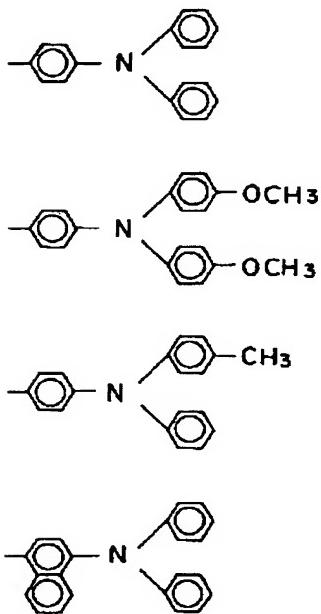


【0114】

フェニルオキシ基、ビフェニルオキシ基、ナフチルオキシ基、アントラニルオキシ基、ターフェニルイルオキシ基などのアリールオキシ基、メトキシ基、エトキシ基、イソプロポキシ基、ターシャルプチルオキシ基、ペンチルオキシ基などのアルコキシ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、フェニルメチルアミノ基、フェニルエチルアミノ基、フェニルメチルエチルアミノ基、ジトリルアミノ基、エチルフェニルアミノ基、フェニルナフチルアミノ基、フェニルビフェニルイルアミノ基などの炭化水素基を有するアミノ基などが挙げられる。また、D<sup>1</sup>～D<sup>12</sup>の具体例としては、

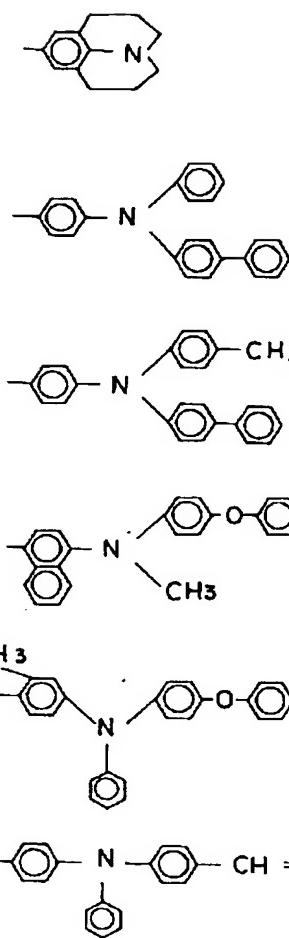
【0113】

【化37】

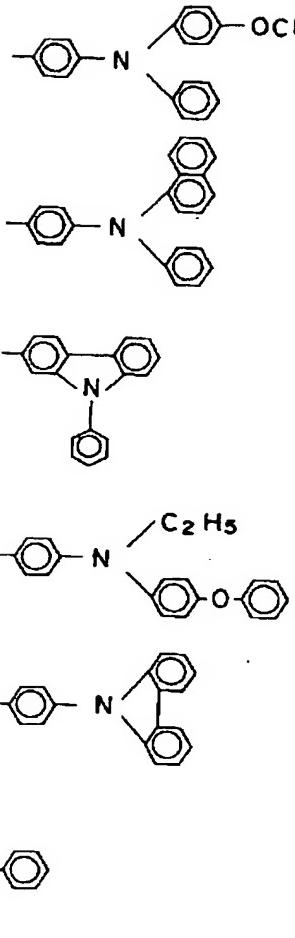


【化38】

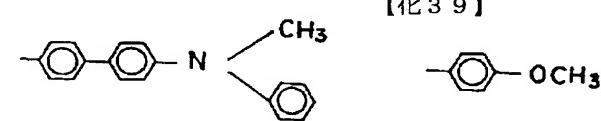
47



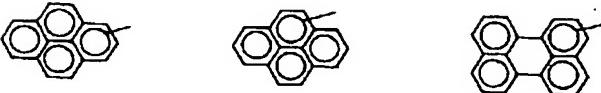
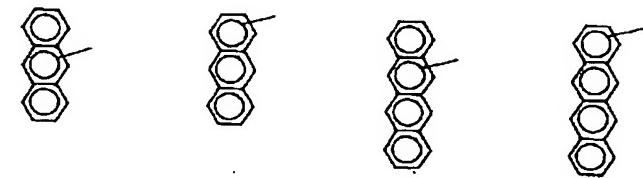
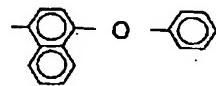
48



【0115】

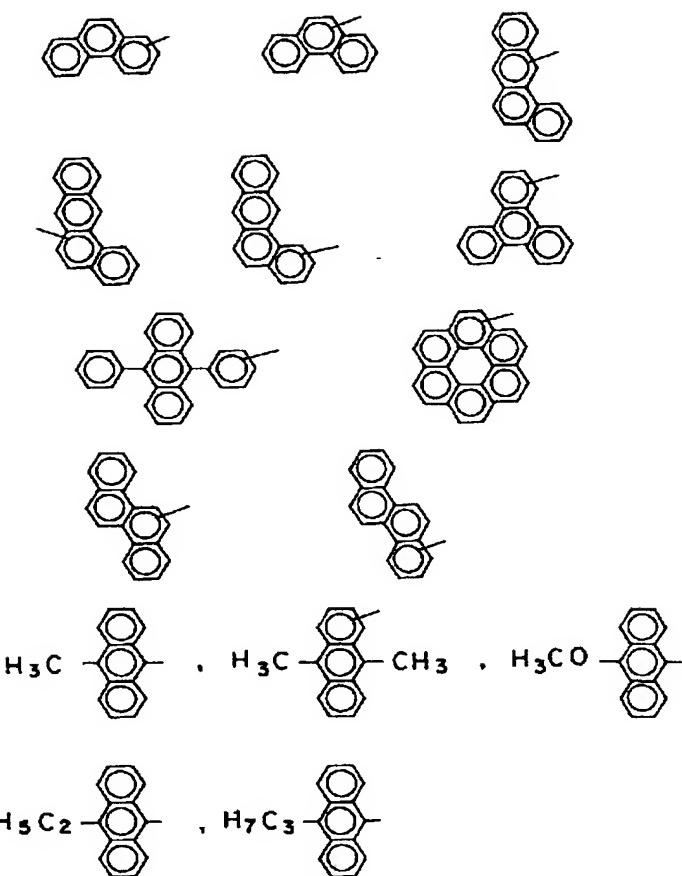


【化39】



【0116】

【化40】

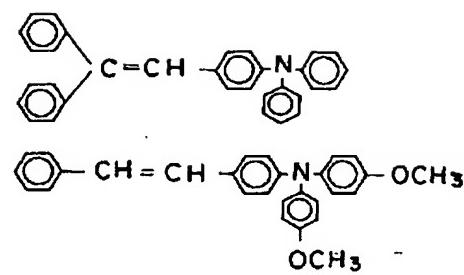


【0117】などが挙げられる。上記一般式 (IV) ~

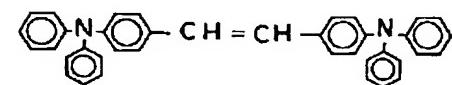
(X) で表される化合物の具体例としては、

【0118】

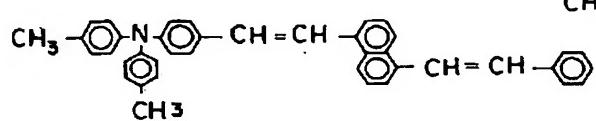
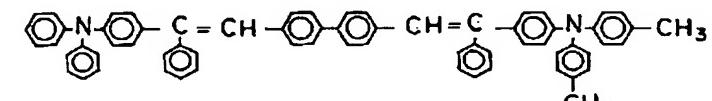
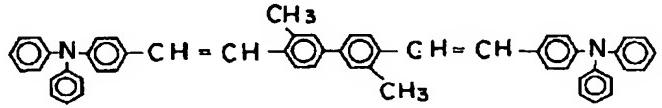
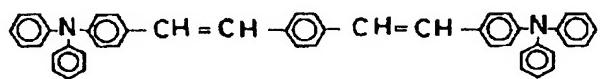
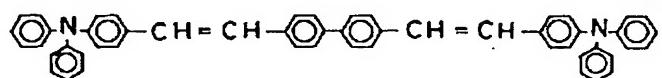
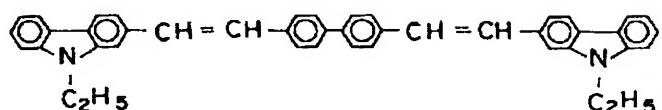
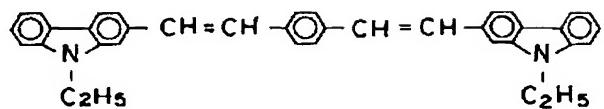
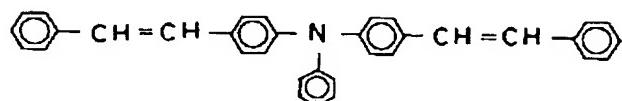
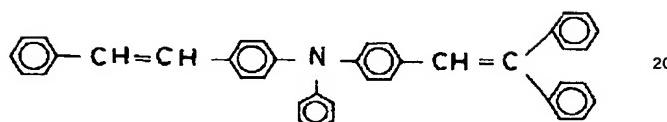
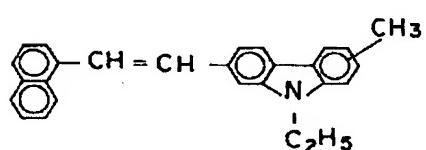
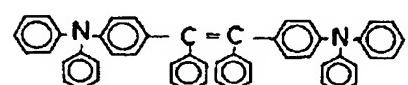
【化41】



【0119】  
【化42】

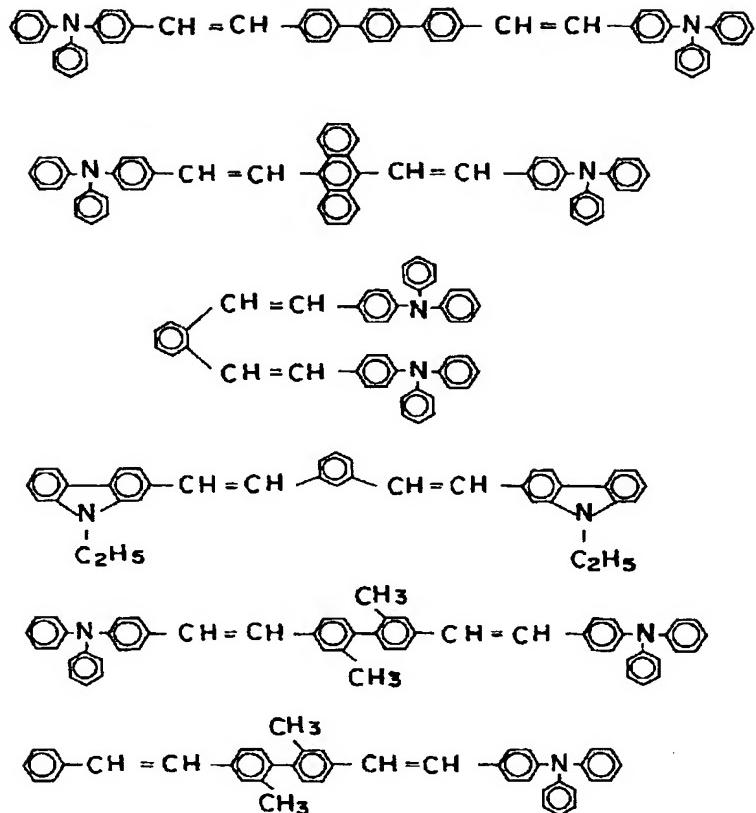


10



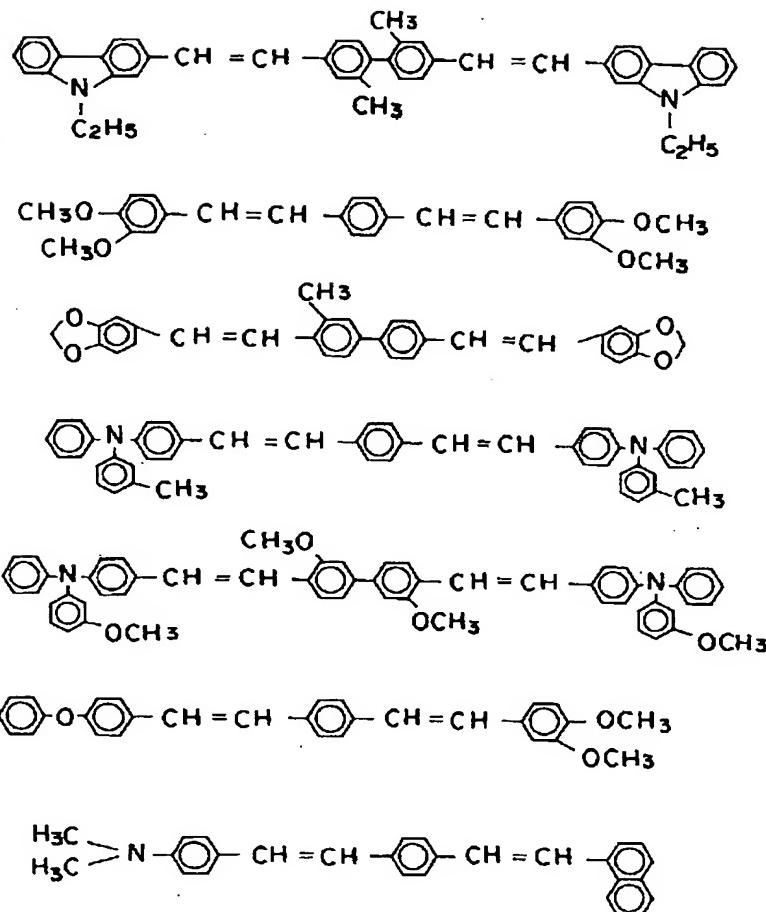
53

54



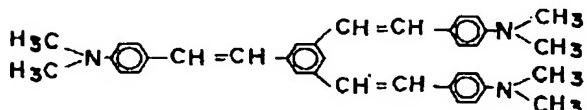
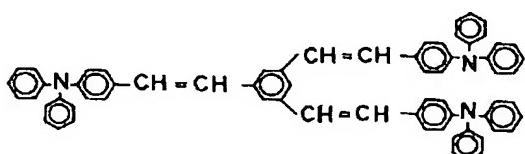
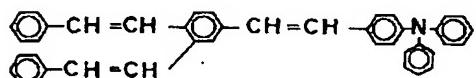
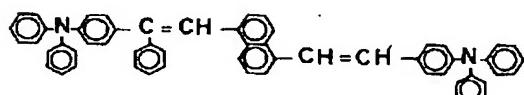
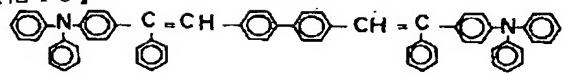
【0121】

【化44】

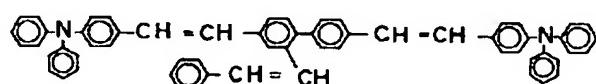
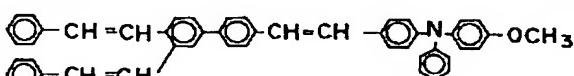
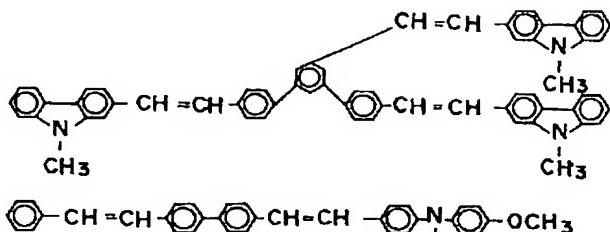


【0122】

【化 4 5】



26



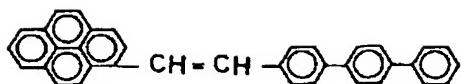
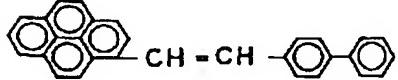
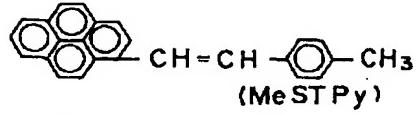
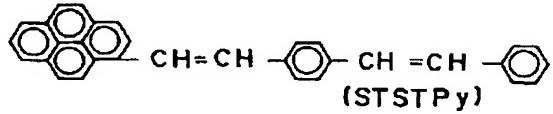
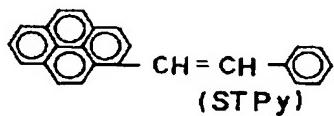
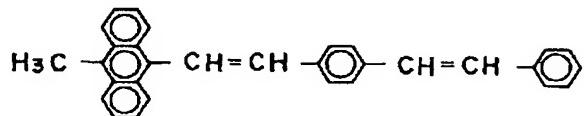
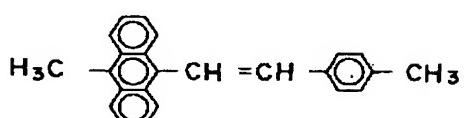
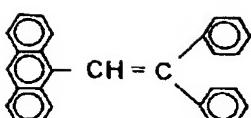
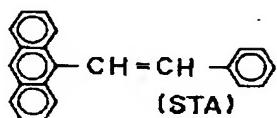
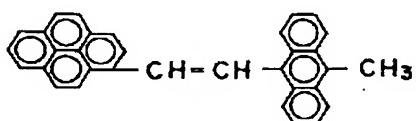
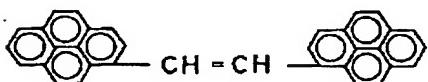
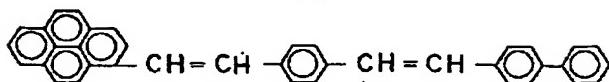
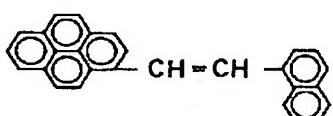
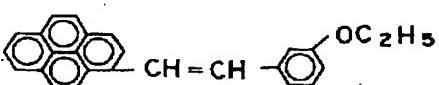
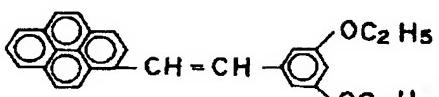
[0 1 2 4]

【化 4 7】

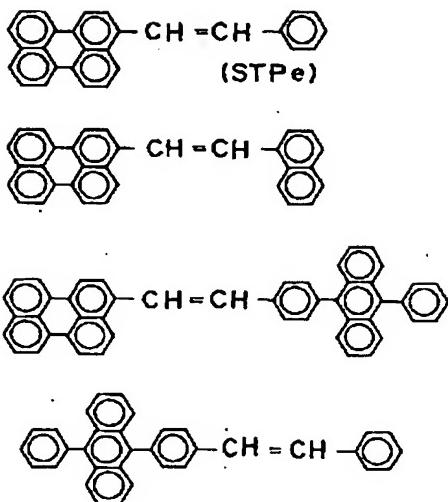
40

[0 1 2 3 ]

【化46】

【0125】  
【化48】

59



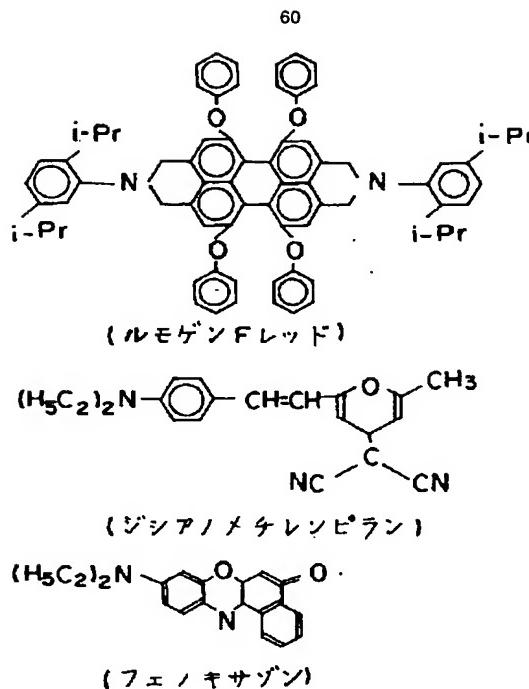
【0127】などが挙げられ、その他の青色蛍光体として好ましいものとして、アントラセン、ペリレン、コロネン等の多環芳香族やそのアルキル置換体がある。

【0128】緑色蛍光体としては溶液状態での蛍光ピーク波長が480nm以上580nm未満である有機化合物であれば特に制限はない。ドープする緑色蛍光体としては、3-(2'-ベンジミダゾリル)-7-N,N-ジエチルアミノクマリン(クマリン535)、3-(2-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン(クマリン540)、2,3,5,6-1H,4H-テトラヒドロ-8-トリフルオロメチルキノリジノ-<9,9a,1-g h>クマリン(クマリン540A)、3-(5-クロロ-2-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン(クマリン34)、4-トリフルオロメチルピペリジノ[3,2-g]クマリン(クマリン340)、N-エチル-4-トリフルオロメチルピペリジノ[3,2-g]クマリン(クマリン355)、N-メチル-4-トリフルオロメチルピペリジノ[2,3-h]クマリン、9-シアノ-1,2,4,5-3H,6H,10H-テトラヒドロ-1-ベンゾピラノ[9,9a1-g h]キノリジン-10-オン(クマリン337)等のクマリン化合物、2,7-ジクロロフルオレセン等のキサンチン色素、テトラゼン、キナクリドン化合物等が挙げられる。

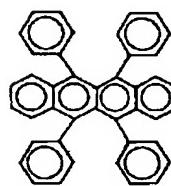
【0129】赤色蛍光体として好ましい有機化合物としては、溶液状態でのピーク波長が580nm以上650nm以下であればよく、特に制限はないが、例えば、ヨーロッパ公開特許第0281381号公報に記載されている赤色発進レーザー色素として用いられるジシアノメチレンピラン誘導体、ジシアノメチレンチオピラン誘導体、フルオレセイン誘導体、ペリレン誘導体などが挙げられる。具体的には、

[0130]

【化 50】



20



(ルブラン)

【0131】などが挙げられる。これらの有機化合物は、層を形成する有機化合物に対して、0.1～10モル%、好ましくは0.5～5モル%の割合で含有させることが必要である。この0.1～10モル%というのは、濃度消光を生じないための濃度範囲である。

### (2) 正孔注入層

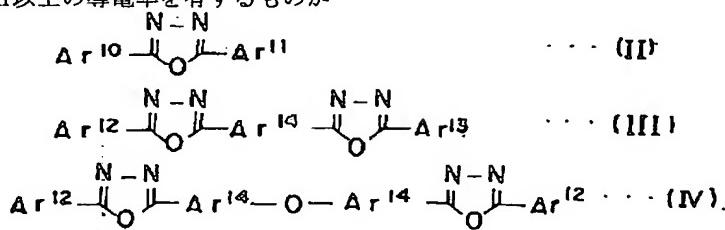
次に、正孔注入層は、必ずしも本発明に用いられる素子に必要なものではないが、発光性能の向上のために用いた方が好ましいものである。この正孔注入層は発光層への正孔注入を助ける層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが、通常  $5.5 \text{ eV}$  以下と小さい。このような正孔注入層としては、より低い電界で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、たとえば  $10^4 \sim 10^6 \text{ V/cm}$  の電界印加時に、少なくとも  $10^{-6} \text{ cm}^2 \sim / \text{V} \cdot \text{sec}$  であればなお好ましい。このような正孔注入材料については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷輸送材として慣用されているものや、EL素子の正孔注入層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0132】具体例としては、例えばトリアゾール誘導体(米国特許3,112,197号明細書等参照)、オ

キサジアゾール誘導体（米国特許3, 189, 447号明細書等参照）、イミダゾール誘導体（特公昭37-16096号公報等参照）、ポリアリールアルカン誘導体（米国特許3, 615, 402号明細書、同第3, 820, 989号明細書、同第3, 542, 544号明細書、特公昭45-555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報等参照）、ピラゾリン誘導体およびピラゾロン誘導体（米国特許第3, 180, 729号明細書、同第4, 278, 746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報等参照）、フェニレンジアミン誘導体（米国特許第3, 615, 404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照）、アリールアミン誘導体（米国特許第3, 567, 450号明細書、同第3, 180, 703号明細書、同第3, 240, 597号明細書、同第3, 658, 520号明細書、同第4, 232, 103号明細書、同第4, 175, 961号明細書、同第4, 012, 376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1, 110, 518号明細書等参照）、アミノ置換カルコン誘導体（米国特許第3, 526, 501号明細書等参照）、オキサゾール誘導体（米国特許第3, 257, 203号明細書等に開示のもの）、スチリルアントラセン誘導体（特開昭56-46234号公報等参照）、フルオレノン誘導体（特開昭54-110837号公報等参照）、ヒドラゾン誘導体（米国特許第3, 717, 462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照）、スチルベン誘導体（特開昭61-210363号公報、同61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照）、シラザン誘導体（米国特許第4, 950, 950号明細書）、ポリシラ

ン系（特開平2-204996号公報）、アニリン系共重合体（特開平2-282263号公報）、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー（特にチオフェンオリゴマー）等を挙げることができる。正孔注入層の材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物（特開昭63-2956965号公報等に開示のもの）、芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物（米国特許第4, 127, 412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報等参照）、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。上記ポルフィリン化合物の代表例としては、ポルфин、1, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ポルфин銅(II)、1, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ポルフィン、シリコンフタロシアニンオキシド、アルミニウムフタロシアニンクロリド、フタロシアニン（無金属）、ジリチウムフタロシアニン、銅テトラメチルフタロシアニン、銅フタロシアニン、クロムフタロシアニン、亜鉛フタロシアニン、鉛フタロシアニン、チタニウムフタロシアニンオキシド、Mgフタロシアニン、銅オクタメチルフタロシアニン等を挙げができる。また、前記芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノフェニル、N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス-(3-メチルフェニル)-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン（以下TPDと略記する）、2, 2-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)プロパン、1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン、N, N, N', N'-テトラ-p-トリル-4, 4'-ジアミノフェニル、1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン、ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン、ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)フェニルメタン、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(4-メトキシフェニル)-4, 4'-ジアミノビフェニル、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノフェニルエーテル、4, 4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル、N, N, N-トリ(p-トリル)アミン、4-(ジ-p-トリルアミノ)-4'-[4-(ジ-p-トリルアミノ)スチリル]スチルベン、4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン、3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニ

ルアミノスチルベンゼン、N-フェニルカルバゾール、米国特許第5,061,569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(以下NPDと略記する)、また、特開平4-308688号公報で記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4'''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(以下MTDA-TAと略記する)等を挙げることができる。また、発光層の材料として示した前述の芳香族ジメチリディン系化合物の他、p型-Si, p型SiC等の無機化合物も正孔注入層の材料として使用することができる。正孔注入層は、上述した化合物を、例えば真空蒸着法、スピンドル法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔注入層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は5nm～5μmである。この正孔注入層は、上述した材料の一種または二種以上からなる一層で構成されていてもよいし、または、前記正孔注入層とは別種の化合物からなる正孔注入層を積層したものであってもよい。また、有機半導体層は、発光層への正孔注入または電子注入を助ける層であって、 $10^{-10}$  S/cm以上の導電率を有するものが



【0134】 [式中  $A_{r^{10}}$  ~  $A_{r^{13}}$  はそれぞれ置換または無置換のアリール基を示し、  $A_{r^{10}}$  と  $A_{r^{11}}$  および  $A_{r^{12}}$  と  $A_{r^{13}}$  はそれぞれにおいて互いに同一であっても異なっていてもよく、  $A_{r^{14}}$  置換または無置換のアリーベン基を示す。] で表わされる電子伝達化合物が挙げられる。ここで、アリール基としてはフェニル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基などが挙げられ、アリーベン基としてはフェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラセニレン基、ペ

好適である。このような有機半導体層の材料としては、含チオフェンオリゴマーや含アリールアミンオリゴマーなどの導電性オリゴマー、含アリールアミンデンドリマーなどの導電性デンドリマーなどを用いることができる。

### (3) 電子注入層

一方電子注入層は、発光層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きく、また付着改善層は、この電子注入層の中で、特に陰極との付着が良い材料からなる層である。電子注入層に用いられる材料としては、たとえば8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体、あるいはオキサジアゾール誘導体が好ましく挙げられる。また、付着改善層に用いられる材料としては、特に8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体が好適である。上記8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシン（一般に8-キノリノールまたは8-ヒドロキシキノリン）のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物が挙げられる。一方、オキサジアゾール誘導体としては、一般式(II)、(III)および(IV)

[0 1 3 3]

【化 5 1】

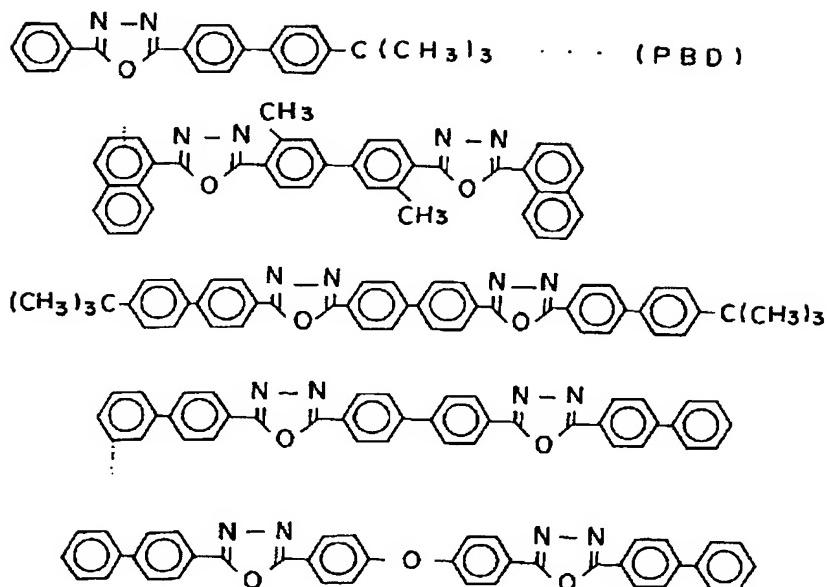
ニレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。また、置換基としては炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基またはシアノ基などが挙げられる。この電子伝達化合物は、薄膜形成性のものが好ましい。上記電子伝達化合物の具体例としては、下記のものが挙げられる。

[0135]

【化 5 2】

65

66



## 【0136】

【実施例】以下、本発明を実施例によってさらに具体的に説明する。

【実施例1】25mm×75mm×1.1mmのサイズのガラス基板上にITO電極を100nmの厚さで成膜したものを透明支持基板とした。これをイソプロピルアルコールで5分間超音波洗浄した後、純水で5分間洗浄し最後に再びイソプロピルアルコールで5分間超音波洗浄した。そしてこの透明支持基板を市販の真空蒸着装置（日本真空技術社製）の基板ホルダーに固定し、モリブデン製の抵抗加熱ポート7つを用意してそれぞれに【化53】に示す4,4',4''-トリスー[N-(m-トリル)-N-フェニルアミノ]-トリフェニルアミン(MTADATA)を500mg、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス-(3-メチルフェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン(TPD)を200mg入れ、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル(DPVBi)を200mg入れ、4,4'-ビス[2-(4-(N,N-ジフェニルアミノ)フェニル]ビニル]ビフェニル(DPAVBi)を200mg入れ、【化53】に示すキナクリドン(QN)を200mg入れ、【化53】に示すDCMを200mg入れ、最後にトリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム(A1q)を100mg入れた真空チャバー内を1×10<sup>-4</sup>Paまで減圧した。そして、まずMTADATA入りのポートを加熱してMTADATAを基板上に堆積させ、膜厚60nmの正孔注入層を成膜した。次に、TPD入りの前記ポートを加熱しTPDを蒸発させて、膜厚20nmの正孔輸送層を成膜した。続いて、DPVBi入りのポートとDPAVBi入りのポートを同時に加熱蒸発させ正孔輸送層の上に、青色発光層とし

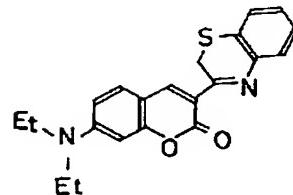
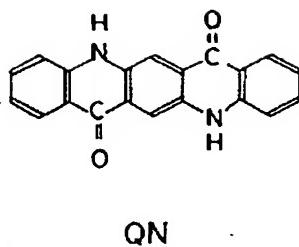
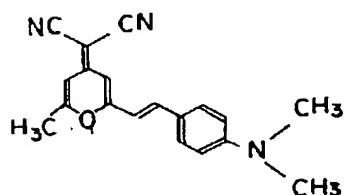
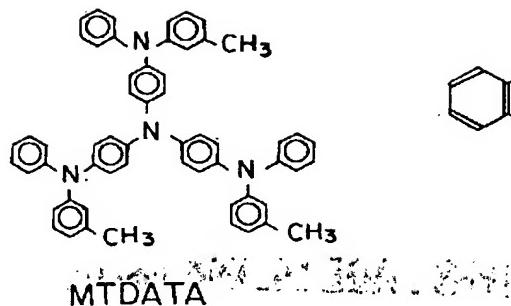
て20nm積層蒸着した（混合比はDPVBi:DPAVi=40:1重量比）。次にDPVBi入りポートとQN入りポートを同時に加熱蒸発させ、緑色発光層として10nm積層蒸着した（混合比はDPVBi:QN=40:1重量比）。

次に、DPVBi入りポートとDCM入りポートを同時に加熱蒸発させ、赤色発光層として10nm積層蒸着した（混合比はDPVBi:DCM=40:3重量比）。最後にA1q（電子注入層）を20nm堆積させた。そしてこれを真空槽から取り出して、上記発光層の上にステンレススチール製のマスクを設置し、再び基板ホルダーに固定した。さらに、タンクステン製バスケットにAgワイヤー0.5g入れ、また別のモリブデン製ポートにMgリボン1gを入れた。真空槽内を1×10<sup>-4</sup>Paまで減圧して、その上にMgを1.8nm/s、同時にAgを0.1nm/sの蒸着速度で蒸着して陰電極を作製した。素子は8Vの電圧をITOを陽極、Mg:Agを陰極として印加すると、白色の均一発光した(CIE色度座標(0.36, 0.34))。素子は8Vで電流密度2.1mA/cm<sup>2</sup>、輝度200cd/m<sup>2</sup>であった。効率3.74(1m/W)であった。

【0137】【実施例2】緑色発光層をA1qと【化53】に示すクマリンの混合発光層（混合比はA1q:クマリン=40:1重量比）としたこと以外は実施例1と全く同様に素子を作製した。素子は8Vで電流密度1.9mA/cm<sup>2</sup>、輝度196cd/m<sup>2</sup>で白色均一発光した(CIE色度座標(0.34, 0.33))。効率3.96(1m/W)であった。

## 【0138】

## 【化53】



【0139】 [実施例3] 各発光層の厚さを5nmとし  
発光層作製において実施例1の操作を2度繰り返した以外は実施例1と同様に素子を作製した。すなわち素子構成は、ガラス基板/ITO/MTDATA/TPD/青色発光層/緑色発光層/赤色発光層/青色発光層/緑色発光層/赤色発光層/電子注入層/Mg:Agである。  
素子は8Vで電流密度3.7mA/cm<sup>2</sup>、輝度250cd/m<sup>2</sup>で白色均一発光した(CIE色度座標(0.36, 0.34))。効率2.56(lm/W)であった。

#### 【0140】

【発明の効果】以上説明したように本発明によって、高輝度、高効率の白色発光が可能な有機EL発光装置を提供することができる。

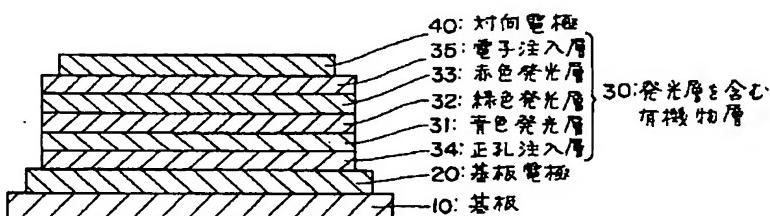
#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の有機EL発光装置の一実施形態を模式的に示す断面図である。

#### 【符号の説明】

- |                |           |
|----------------|-----------|
| 10: 基板         | 20: 基板電極  |
| 30: 発光層を含む有機物層 | 31: 青色発光層 |
| 32: 緑色発光層      | 33: 赤色発光層 |
| 34: 正孔注入層      | 35: 電子注入層 |
| 36: 電子注入層      | 40: 対向電極  |

【図1】



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**